

# DIPHENYLIMIDAZOLE COMPOUND AND FUNGICIDE FOR AGRICULTURE AND HORTICULTURE

Publication number: JP2001163861

Publication date: 2001-06-19

Inventor: MITANI AKIRA; ICHINARI DAISUKE; HAMAMURA HIROSHI; SAIGA MUTSUUYUKI

Applicant: NIPPON SODA CO

Classification:

- international: C07D233/64; A01N43/50; C07D233/68; C07D401/04; C07D403/04; C07D409/04; C07D417/04; C07D233/00; A01N43/48; C07D401/00; C07D403/00; C07D409/00; C07D417/00; (IPC1-7): C07D233/64; A01N43/50; C07D233/68; C07D401/04

- european:

Application number: JP19990347661 19991207

Priority number(s): JP19990347661 19991207

[Report a data error here](#)

## Abstract of JP2001163861

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a new diphenylimidazole compound, and to provide a fungicide which can profitably be synthesized, can safely be used in sure effects and is useful for agriculture and horticulture. SOLUTION: A diphenylimidazole compound represented by the general formula [I] A is H, a halogen atom, a 1 to 10C alkyl, a 1 to 10C haloalkyl, a heterocyclic group selected from groups of the formulas [X is a halogen atom, a 1 to 6C alkyl or a 1 to 6C haloalkyl; Y is H or a 1 to 6C alkyl; Z is a halogen atom, a 1 to 6C alkyl, a 1 to 6C haloalkyl or the like; (m) is 0, 1 or 2] or the like; R1 and R2 are each a halogen atom, a 1 to 6C alkyl or the like; R3 and R4 are each H, a 1 to 5C alkylcarbonyl or the like; (k) and (l) are each 0 or an integer of 1 to 5), and the fungicide for agriculture and horticulture, characterized by containing one or more compounds selected the compound or its salts as active ingredient.

---

Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号  
特開2001-163861  
(P2001-163861A)

(43)公開日 平成13年6月19日(2001.6.19)

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テームト <sup>*</sup> (参考)
C 0 7 D 233/64	1 0 1	C 0 7 D 233/64	1 0 1 4 C 0 6 3
A 0 1 N 43/50		A 0 1 N 43/50	L 4 H 0 1 1
C 0 7 D 233/68		C 0 7 D 233/68	
401/04		401/04	
403/04		403/04	
審査請求 未請求 請求項の数2 O L (全 34 頁) 最終頁に続く			

(21)出願番号 特願平11-347661

(22)出願日 平成11年12月7日(1999.12.7)

(71)出願人 000004307

日本曹達株式会社

東京都千代田区大手町2丁目2番1号

(72)発明者 三谷 晃

神奈川県小田原市高田345 日本曹達株式  
会社小田原研究所内

(72)発明者 市成 大輔

神奈川県小田原市高田345 日本曹達株式  
会社小田原研究所内

(74)代理人 100108419

弁理士 大石 治仁

最終頁に続く

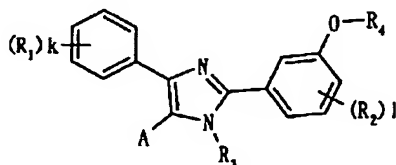
(54)【発明の名称】 ジフェニルイミダゾール化合物および農園芸用殺菌剤

(57)【要約】

【課題】新規なジフェニルイミダゾール化合物、及び工業的に有利に合成でき効果が確実で安全に使用できる農園芸用殺菌剤を提供する。

【解決手段】一般式〔I〕

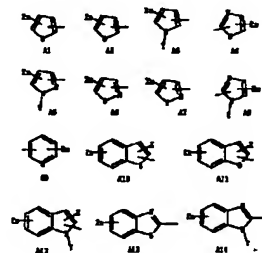
【化1】



〔I〕

〔式中、Aは、水素原子、ハロゲン原子、C<sub>1-10</sub>アルキル基、C<sub>1-10</sub>ハロアルキル基、又は下記式

【化2】

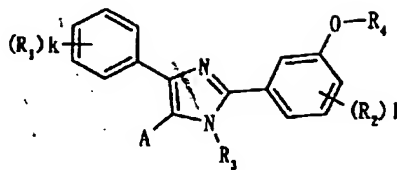


(式中、Xはハロゲン原子、C<sub>1-6</sub>アルキル基又はC<sub>1-6</sub>ハロアルキル基を表し、Yは水素原子又はC<sub>1-6</sub>アルキル基を表し、Zはハロゲン原子、C<sub>1-6</sub>アルキル基、C<sub>1-6</sub>ハロアルキル基等を表し、mは0、1又は2を表す。)から選ばれる複素環基等を表し、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>はハロゲン原子、C<sub>1-6</sub>アルキル基等を表し、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>は水素原子、C<sub>1-6</sub>アルキルカルボニル基等を表し、k、lは0又は1～5の整数を表す。)で表されるジフェニルイミダゾール化合物、及び該化合物又はその塩の1種以上を有効成分として含有することを特徴とする農園芸用殺菌剤。

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項1】一般式〔I〕

## 【化1】

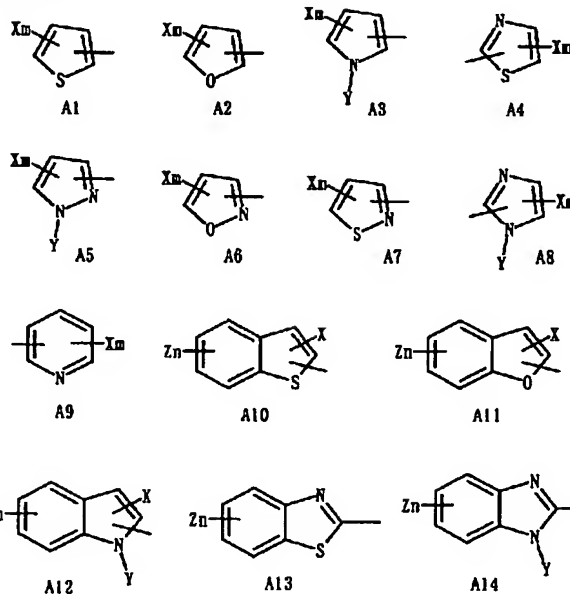


〔I〕

〔式中、Aは、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ホルミル基、 $C_{1-10}$ アルキル基、 $C_{2-10}$ アルケニル基、 $C_{2-10}$ アルキニル基、 $C_{1-10}$ ハロアルキル基、 $C_{2-10}$ ハロアルケニル基、 $C_{2-10}$ ハロアルキニル基、 $C_{1-10}$ アルコキシ基、 $C_{1-10}$ ハロアルコキシ基、Gで置換されてもよいフェニル $C_{1-3}$ アルキル基、Gで置換されてもよいフェノキシ $C_{1-3}$ アルキル基、Gで置換されてもよいフェニルチオ $C_{1-3}$ アルキル基、 $C_{3-6}$ シクロアル

キル $C_{1-10}$ アルキル基、(ハロゲン原子、 $C_{1-10}$ アルキル基もしくはGで置換されてもよいフェニル基で置換されてもよい) $C_{3-10}$ シクロアルキル基、Gで置換されてもよいフェニル基で置換された $C_{2-10}$ アルケニル基、Gで置換されてもよいフェニル基で置換された $C_{2-10}$ アルキニル基、 $C_{1-6}$ トリアルキルシリル $C_{2-10}$ アルキニル基、ヒドロキシミノメチル基、 $C_{1-10}$ アルコキシミノメチル基、 $C_{1-6}$ アルコキシカルボニル基、ジ $C_{1-6}$ アルキルカルバモイル基、Gで置換されていてもよいフェニル $C_{1-10}$ アルコキシ基、Gで置換されてもよいフェノキシ基、ジ $C_{1-6}$ アルキルスルファモイル基、Gで置換されてもよいナフチル基、式S(O) $n$ R<sub>5</sub>(ここで、R<sub>5</sub>は $C_{1-6}$ アルキル基、 $C_{1-6}$ ハロアルキル基もしくはGで置換されてもよいフェニル基を表し、nは0、1もしくは2を表す。)で表される基、または下記式

## 【化2】



〔式中、Xはハロゲン原子、 $C_{1-6}$ アルキル基又は $C_{1-6}$ ハロアルキル基を表し、Yは水素原子又は $C_{1-6}$ アルキル基を表し、Zはハロゲン原子、 $C_{1-6}$ アルキル基、 $C_{1-6}$ ハロアルキル基、 $C_{1-6}$ アルコキシ基又はニトロ基を表し、mは0、1又は2を表す。mが2のとき、X、Zはそれぞれ相異なってもよい。〕から選ばれる複素環基を表し、

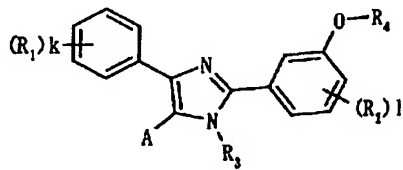
R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>はそれぞれ独立して、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシ基、 $C_{1-6}$ アルキル基、 $C_{1-6}$ ハロアルキル基、 $C_{1-6}$ アルコキシ基、 $C_{2-6}$ アルケニル基、 $C_{2-6}$ ハロアルケニル基、 $C_{2-6}$ アルキニル基、ジ $C_{1-6}$ アルキルアミノ基、 $C_{3-6}$ シクロアルキル基、 $C_{1-6}$ アルコキシカルボニル基、 $C_{1-6}$ アルキルチオ基、 $C_{1-6}$ アルキルスルフィニル基または $C_{1-6}$ アルキルスルホニル基を表し、

R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>はそれぞれ独立して、水素原子、 $C_{1-6}$ アルキルカルボニル基、 $C_{1-6}$ アルコキシカルボニル基、ジ $C_{1-6}$ アルキルカルバモイル基、Gで置換されてもよいベンゾイル基、 $C_{1-6}$ アルキルスルホニル基、ジ $C_{1-6}$ アルキルスルファモイル基、Gで置換されてもよいフェニルスルホニル基、 $C_{1-6}$ アルコキシメチル基または、 $C_{1-6}$ アルキルカルボキシメチル基を表す。Gはハロゲン原子、 $C_{1-6}$ アルキル基、 $C_{1-10}$ アルコキシまたは $C_{1-6}$ ハロアルキル基を表し、これらの置換基は1、2又は3個置換されていてもよく、2個以上置換されているときは、同一でも相異なってもよい。kは0または1～5の整数を表し、kが2以上のときR<sub>1</sub>は相異なってもよい。lは0または1～4の整数を表し、lが2以上のときR<sub>2</sub>は相異なってもよい。但し、Aが塩素原子であって、R<sub>4</sub>がアセチル基である化合物、およびAが4-

ビリジル基であって、Xが2, 6-ジメチルまたは2, 4, 6-トリメチルであり、かつYが4-CIである化合物をのぞく。)で表されるジフェニルイミダゾール化合物。

【請求項2】一般式【I'】

【化3】

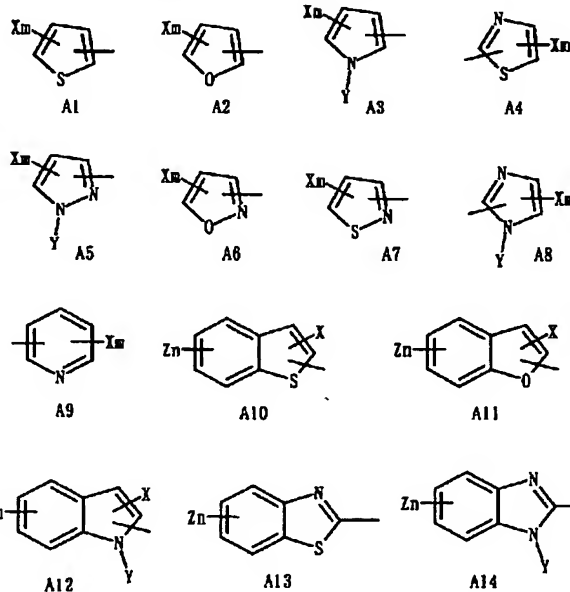


【I'】

(式中、Aは、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ホルミル基、C<sub>1-10</sub>アルキル基、C<sub>2-10</sub>アルケニル基、C<sub>2-10</sub>アルキニル基C<sub>1-10</sub>ハロアルキル基、C<sub>2-10</sub>ハロアルケニル基、C<sub>2-10</sub>ハロアルキニル基、C<sub>1-10</sub>アルコキシ基、C<sub>1-10</sub>ハロアルコキシ基、Gで置換されてもよいフェニルC<sub>1-3</sub>アルキル基、Gで置換され

てもよいフェノキシC<sub>1-3</sub>アルキル基、Gで置換されてもよいフェニルチオC<sub>1-3</sub>アルキル基、C<sub>3-6</sub>シクロアルキルC<sub>1-10</sub>アルキル基、(ハロゲン原子、C<sub>1-10</sub>アルキル基もしくは、Gで置換されてもよいフェニル基で置換されてもよい)C<sub>3-10</sub>シクロアルキル基、Gで置換されてもよいフェニル基で置換されたC<sub>2-10</sub>アルケニル基、Gで置換されてもよいフェニル基で置換されたC<sub>2-10</sub>アルキニル基、C<sub>1-6</sub>トリアルキルシリルC<sub>2-10</sub>アルキニル基、ヒドロキシイミノメチル基、C<sub>1-10</sub>アルコキシイミノメチル基、C<sub>1-6</sub>アルコキシカルボニル基、ジC<sub>1-6</sub>アルキルカルバモイル基、Gで置換されてもよいフェニルC<sub>1-10</sub>アルコキシ基、Gで置換されてもよいフェノキシ基、ジC<sub>1-6</sub>アルキルスルファモイル基、Gで置換されてもよいナフチル基、式S(O)<sub>n</sub>R<sub>5</sub>(ここで、R<sub>5</sub>はC<sub>1-6</sub>アルキル基、C<sub>1-6</sub>ハロアルキル基もしくはGで置換されてもよいフェニル基を表し、nは0、1もしくは2を表す。)で表される基、または下記式

【化4】



(式中、Xはハロゲン原子、C<sub>1-6</sub>アルキル基又はC<sub>1-6</sub>ハロアルキル基を表し、Yは水素原子又はC<sub>1-6</sub>アルキル基を表し、Zはハロゲン原子、C<sub>1-6</sub>アルキル基、C<sub>1-6</sub>ハロアルキル基、C<sub>1-6</sub>アルコキシ基又はニトロ基を表し、mは0、1又は2を表す。mが2のとき、X、Zはそれぞれ相異なっても良い。)から選ばれる複素環基を表し、

R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>はそれぞれ独立して、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシ基、C<sub>1-6</sub>アルキル基、C<sub>1-6</sub>ハロアルキル基、C<sub>1-6</sub>アルコキシ基、C<sub>2-6</sub>アルケニル基、C<sub>2-6</sub>ハロアルケニル基、C<sub>2-6</sub>アルキニル基、ジC<sub>1-6</sub>アルキルアミノ基、C<sub>3-6</sub>シクロアルキル基、C<sub>1-6</sub>アルコキシカルボニル基、C<sub>1-6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1-6</sub>アルキルスルフィニル基またはC<sub>1-6</sub>アルキルスルホ

ニル基を表し、

R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>はそれぞれ独立して、水素原子、C<sub>1-6</sub>アルキルカルボニル基、C<sub>1-6</sub>アルコキシカルボニル基、ジC<sub>1-6</sub>アルキルカルバモイル基、Gで置換されてもよいベンゾイル基、C<sub>1-6</sub>アルキルスルホニル基、ジC<sub>1-6</sub>アルキルスルファモイル基、Gで置換されてもよいフェニルスルホニル基、C<sub>1-6</sub>アルコキシメチル基または、C<sub>1-6</sub>アルキルカルボキシメチル基を表し、

Gはハロゲン原子、C<sub>1-6</sub>アルキル基、C<sub>1-10</sub>アルコキシまたはC<sub>1-6</sub>ハロアルキル基を表す。また、これらの置換基は1、2又は3個置換されていてもよく、2個以上置換されているときは、同一でも相異なってもよい。kは0または1~5の整数を表し、kが2以上のときR<sub>1</sub>は相異なっても良い。lは0または1~4の整数

を表し、1が2以上のとき $R_2$ は相異なっても良い。}で表されるジフェニルイミダゾール化合物またはその薬学的に許容される塩の1種もしくは2種以上を有効成分として含有することを特徴とする農園芸用殺菌剤。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、新規なジフェニルイミダゾール化合物および農園芸用殺菌剤に関する。

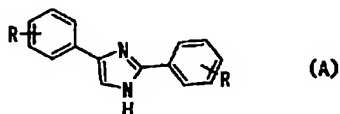
【0002】

【従来の技術】農園芸作物の栽培に当り、作物の病害に対して多数の防除薬剤が使用されているが、その防除効力が不十分であったり、薬剤耐性の病原菌の出現によりその使用が制限されたり、また植物体に被害や汚染を生じたり、あるいは人畜魚類に対する毒性や環境への影響の観点から、必ずしも満足すべき防除薬とは言い難いものが少なくない。従って、かかる欠点の少ない安全に使用できる薬剤の開発が望まれている。

【0003】本発明に類似のジフェニルイミダゾール化合物としては、例えば、Chem. Ber., 100 (12) 4042 (1967) に、下記式 (A)

【0004】

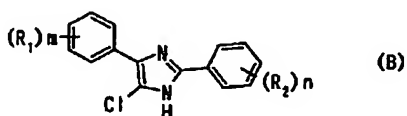
【化5】



【0005】で表わされる化合物の合成法が記載されている。また、特開平2-181752号公報に、下記式 (B)

【0006】

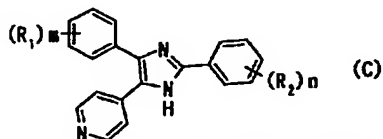
【化6】



【0007】で表わされる化合物が、カラー写真材料として有用である旨が記載されている。WO96/18626号公報には、下記式 (C)

【0008】

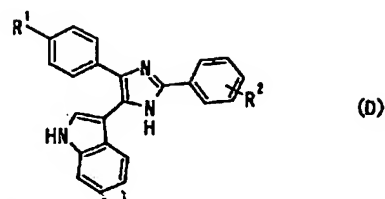
【化7】



【0009】で表わされる化合物が、医薬として有効なタンパク質分解酵素阻害剤であるとの記載がある。また、特開平11-199574号公報には、下記式 (D)

【0010】

【化8】



【0011】で表わされる化合物が、老人性痴呆症等に有効なCa-カルモジュリン依存性ホスホジエステラーゼ阻害剤であることが記載されている。

【0012】しかしながら、いずれの文献にも農園芸用殺菌剤として有用であることは記載されていない。

【0013】

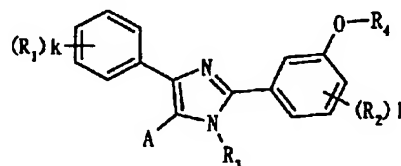
【発明が解決しようとする課題】本発明は、新規なジフェニルイミダゾール化合物、及び工業的に有利に合成でき効果が確実で安全に使用できる農園芸用殺菌剤を提供することを目的とする。

【0014】

【課題を解決するための手段】本発明は、第1に、一般式 [I]

【0015】

【化9】

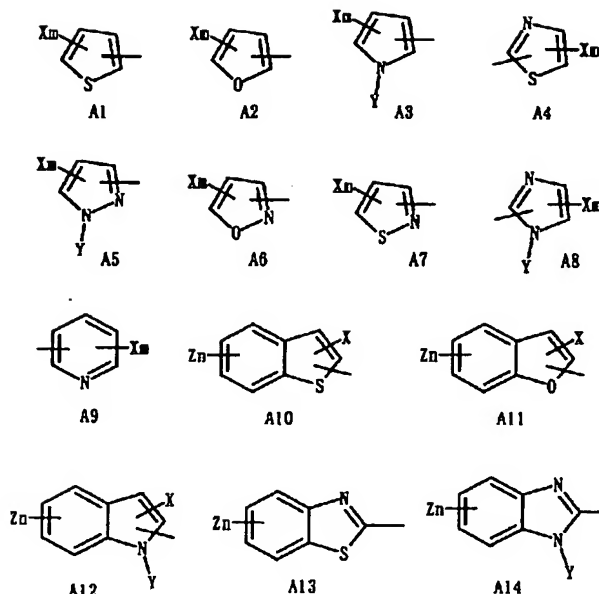


【0016】(式中、Aは、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ホルミル基、 $C_{1-10}$ アルキル基、 $C_{2-10}$ アルケニル基、 $C_{2-10}$ アルキニル基、 $C_{1-10}$ ハロアルキル基、 $C_{2-10}$ ハロアルケニル基、 $C_{2-10}$ ハロアルキニル基、 $C_{1-10}$ アルコキシ基、 $C_{1-10}$ ハロアルコキシ基、Gで置換されてもよいフェニル $C_{1-3}$ アルキル基、Gで置換されてもよいフェノキシ $C_{1-3}$ アルキル基、Gで置換されてもよいフェニルチオ $C_{1-3}$ アルキル基、 $C_{3-6}$ シクロアルキル $C_{1-10}$ アルキル基、(ハロゲン原子、 $C_{1-10}$ アルキル基もしくはGで置換されてもよいフェニル基で置換されてもよい) $C_{3-10}$ シクロアルキル基、Gで置換されてもよいフェニル基で置換された $C_{2-10}$ アルケニル基、Gで置換されてもよいフェニル基で置換された $C_{2-10}$ アルキニル基、 $C_{1-6}$ トリアルキルシリル $C_{2-10}$ アルキニル基、ヒドロキシイミノメチル基、 $C_{1-10}$ アルコキシイミノメチル基、 $C_{1-6}$ アルコキシカルボニル基、ジ $C_{1-6}$ アルキルカルバモイル基、Gで置換されてもよいフェニル $C_{1-10}$ アルコキシ基、Gで置換されてもよいフェノキシ基、ジ $C_{1-6}$ アルキルスルファモイル基、Gで置換されてもよいナフチル基、式 S (O)  $nR_5$  (ここで、 $R_5$ は $C_{1-6}$ アルキル基、 $C_{1-6}$ ハロアルキル基もしくはGで置換されてもよいフェニル基を表し、nは0、1もしくは2を表す。)で表される

基、又は下記式

【0017】

【化10】



【0018】(式中、Xはハロゲン原子、 $C_{1-6}$ アルキル基又は $C_{1-6}$ ハロアルキル基を表し、Yは水素原子又は $C_{1-6}$ アルキル基を表し、Zはハロゲン原子、 $C_{1-6}$ アルキル基、 $C_{1-6}$ ハロアルキル基、 $C_{1-6}$ アルコキシ基又はニトロ基を表し、mは0、1又は2を表す。mが2のときX、Zはそれぞれ相異なっているいても良い。)から選ばれる複素環基を表す。

【0019】 $R_1$ 、 $R_2$ はそれぞれ独立して、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシ基、 $C_{1-6}$ アルキル基、 $C_{1-6}$ ハロアルキル基、 $C_{1-6}$ アルコキシ基、 $C_{2-6}$ アルケニル基、 $C_{2-6}$ ハロアルケニル基、 $C_{2-6}$ アルキニル基、ジ $C_{1-6}$ アルキルアミノ基、 $C_{3-6}$ シクロアルキル基、 $C_{1-6}$ アルコキシカルボニル基、 $C_{1-6}$ アルキルチオ基、 $C_{1-6}$ アルキルスルフィニル基または $C_{1-6}$ アルキルスルホニル基を表す。

【0020】 $R_3$ 、 $R_4$ はそれぞれ独立して、水素原子、 $C_{1-6}$ アルキルカルボニル基、 $C_{1-6}$ アルコキシカルボニル基、ジ $C_{1-6}$ アルキルカルバモイル基、Gで置換されてもよいベンゾイル基、 $C_{1-6}$ アルキルスルホニル基、ジ $C_{1-6}$ アルキルスルファモイル基、Gで置換されてもよいフェニルスルホニル基、 $C_{1-6}$ アルコキシメチル基または、 $C_{1-6}$ アルキルカルボキシメチル基を表す。

【0021】Gはハロゲン原子、 $C_{1-6}$ アルキル基、 $C_{1-10}$ アルコキシまたは $C_{1-6}$ ハロアルキル基を表し、これらの置換基は1、2又は3個置換されていてもよく、2個以上置換されているときは、同一でも相異なっているてもよい。

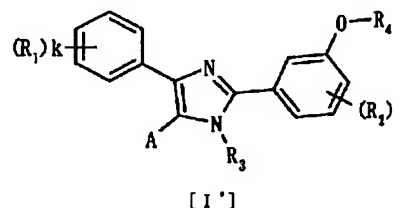
【0022】kは0または1~5の整数を表し、kが2以上のとき $R_1$ は相異なっても良い。lは0または1~4の整数を表し、lが2以上のとき $R_2$ は相異なっても

良い。但し、Aが塩素原子であって、 $R_4$ がアセチル基である化合物、及びAが4-ピリジル基であって、Xが2、6-ジメチル又は2、4、6-トリメチル基であり、かつYが4-CIである化合物をのぞく。}で表されるジフェニルイミダゾール化合物を提供する。

【0023】また本発明は、第2に、一般式【I'】

【0024】

【化11】



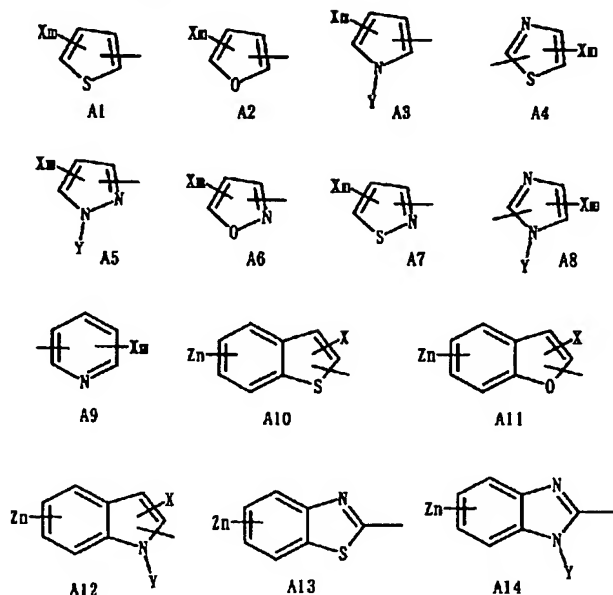
【0025】(式中、Aは、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ホルミル基、 $C_{1-10}$ アルキル基、 $C_{2-10}$ アルケニル基、 $C_{2-10}$ アルキニル基、 $C_{1-10}$ ハロアルキル基、 $C_{2-10}$ ハロアルケニル基、 $C_{2-10}$ ハロアルキニル基、 $C_{1-10}$ アルコキシ基、 $C_{1-10}$ ハロアルコキシ基、Gで置換されてもよいフェニル $C_{1-3}$ アルキル基、Gで置換されてもよいフェノキシ $C_{1-3}$ アルキル基、Gで置換されてもよいフェニルチオ $C_{1-3}$ アルキル基、 $C_{3-6}$ シクロアルキル $C_{1-10}$ アルキル基、(ハロゲン原子、 $C_{1-10}$ アルキル基もしくはGで置換されてもよいフェニル基で置換されてもよい) $C_{3-10}$ シクロアルキル基、Gで置換されてもよいフェニル基で置換された $C_{2-10}$ アルケニル基、Gで置換されてもよいフェニル基で置換された $C_{2-10}$ アルキニル基、 $C_{1-6}$ トリアルキルシリル $C_{2-10}$ アルキニル基、ヒドロキシイミノメチル基、 $C_{1-10}$ アルコキシイミノメチル基、 $C_{1-6}$ アルコキシカ

ルボニル基、ジC<sub>1-6</sub>アルキルカルバモイル基、Gで置換されてもよいフェニルC<sub>1-10</sub>アルコキシ基、Gで置換されてもよいフェノキシ基、ジC<sub>1-6</sub>アルキルスルファモイル基、Gで置換されてもよいナフチル基、式S (O) nR<sub>5</sub> (ここで、R<sub>5</sub>はC<sub>1-6</sub>アルキル基、C<sub>1-6</sub>ハ

ロアルキル基もしくはGで置換されてもよいフェニル基を表し、nは0、1もしくは2を表す。)で表される基、または下記式

【0026】

【化12】



【0027】(式中、Xはハロゲン原子、C<sub>1-6</sub>アルキル基又はC<sub>1-6</sub>ハロアルキル基を表し、Yは水素原子又はC<sub>1-6</sub>アルキル基を表し、Zはハロゲン原子、C<sub>1-6</sub>アルキル基、C<sub>1-6</sub>ハロアルキル基、C<sub>1-6</sub>アルコキシ基又はニトロ基を表し、mは0、1又は2を表す。mが2のときX、Zはそれぞれ相異なっても良い。)から選ばれる複素環基を表す。

【0028】R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>はそれぞれ独立して、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシ基、C<sub>1-6</sub>アルキル基、C<sub>1-6</sub>ハロアルキル基、C<sub>1-6</sub>アルコキシ基、C<sub>2-6</sub>アルケニル基、C<sub>2-6</sub>ハロアルケニル基、C<sub>2-6</sub>アルキニル基、ジC<sub>1-6</sub>アルキルアミノ基、C<sub>3-6</sub>シクロアルキル基、C<sub>1-6</sub>アルコキシカルボニル基、C<sub>1-6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1-6</sub>アルキルスルフィニル基またはC<sub>1-6</sub>アルキルスルホニル基を表す。

【0029】R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>はそれぞれ独立して、水素原子、C<sub>1-6</sub>アルキルカルボニル基、C<sub>1-6</sub>アルコキシカルボニル基、ジC<sub>1-6</sub>アルキルカルバモイル基、Gで置換されてもよいベンゾイル基、C<sub>1-6</sub>アルキルスルホニル基、ジC<sub>1-6</sub>アルキルスルファモイル基、Gで置換されてもよいフェニルスルホニル基、C<sub>1-6</sub>アルコキシメチル基または、C<sub>1-6</sub>アルキルカルボキシメチル基を表し、Gはハロゲン原子、C<sub>1-6</sub>アルキル基、C<sub>1-10</sub>アルコキシまたはC<sub>1-6</sub>ハロアルキル基を表す。また、これらの置換基は1、2又は3個置換されていてもよく、2個以上置換されているときは、同一でも相異なってもよい。

【0030】kは0または1～5の整数を表し、kが2以上のときR<sub>1</sub>は相異なっても良い。lは0または1～4の整数を表し、lが2以上のときR<sub>2</sub>は相異なっても良い。}で表されるジフェニルイミダゾール化合物又はその薬学的に許容される塩の1種もしくは2種以上を有効成分として含有することと特徴とする農薬用殺菌剤を提供する。

【0031】

【発明の実施の形態】次に一般式 [I] 及び [I'] で表される本発明化合物を詳細に説明する。前記一般式 [I] および [I'] における定義において、Aの定義におけるハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素等が挙げられ、C<sub>1-10</sub>アルキル基としては、メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、sec-ブチル、イソブチル、tert-ブチル、ペンチルおよびその異性体、ヘキシルおよびその異性体等の直鎖または分岐のアルキル基が挙げられる。

【0032】C<sub>2-10</sub>アルケニル基としては、エテニル、1-プロペニル、2-プロペニル、1-ブテニル、2-ブテニル、3-ブテニル、1-メチル-2-プロペニル、2-メチル-2-プロペニル、1-ペンテニル、2-ペンテニル、3-ペンテニル、4-ペンテニル、1-メチル-2-ブテニル、2-メチル-2-ブテニル、1-ヘキセニル、2-ヘキセニル、3-ヘキセニル、4-ヘキセニル、5-ヘキセニル等の直鎖または分岐のアルケニル基が挙げられる。

【0033】C<sub>2-10</sub>アルキニル基としては、エチニル、





2-メチル-3-フェニル-1-プロペニル、1,2-ジメチル-3-フェニル-1-プロペニル、1-フェニル-2-プロペニル、2-メチル-1-フェニル-2-プロペニル、2-フェニル-2-プロペニル、1-メチル-2-フェニル-2-プロペニル、3-フェニル-2-プロペニル、1-メチル-3-フェニル-2-プロペニル、2-メチル-3-フェニル-2-プロペニル、1,2-ジメチル-3-フェニル-2-プロペニル、1-フェニル-1-ペンテニル、1-フェニル-2-ペンテニル、1-フェニル-3-ペンテニル、1-フェニル-4-ペンテニル、1-フェニル-1-ヘキセニル、1-フェニル-2-ヘキセニル、1-フェニル-3-ヘキセニル、1-フェニル-4-ヘキセニル、1-フェニル-5-ヘキセニル等が挙げられる。

【0043】Gで置換されてもよいフェニル基で置換されたC<sub>2-10</sub>アルキニル基としては、2-フェニルエチニル、2-(4-クロロフェニル)エチニル、2-(4-メチルフェニル)エチニル、2-(4-メトキシフェニル)エチニル、2-(4-トリフルオロメチルフェニル)エチニル、3-フェニル-1-プロピニル、1-フェニル-2-プロピニル、3-フェニル-1-ブチニル、4-フェニル-1-ブチニル、1-フェニル-2-ブチニル、1-フェニル-3-ブチニル、2-フェニル-3-ブチニル等が挙げられる。

【0044】C<sub>1-6</sub>トリアルキルシリルC<sub>2-10</sub>アルキニル基としては、2-トリメチルシリルエチニル、2-トリエチルシリルエチニル、2-トリプロピルシリルエチニル、2-トリイソプロピルシリルエチニル、2-(*tert*-ブチルジメチルシリル)エチニル等が挙げられる。

【0045】C<sub>1-10</sub>アルコキシミノメチル基としては、メトキシミノメチル、エトキシミノメチル、プロポキシミノメチル、イソプロポキシミノメチル、ブトキシミノメチル、*sec*-ブトキシミノメチル、イソブトキシミノメチル、*tert*-ブトキシミノメチル等が挙げられる。

【0046】C<sub>1-6</sub>アルコキシカルボニル基としては、メトキシカルボニル、エトキシカルボニル、プロポキシカルボニル、イソプロポキシカルボニル、ブトキシカルボニル、*tert*-ブトキシカルボニル等が挙げられる。

【0047】ジC<sub>1-6</sub>アルキルカルバモイル基としては、ジメチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、ジブチルカルバモイル、ジヘキシルカルバモイル等が挙げられ、Gで置換されてもよいフェニルC<sub>1-10</sub>アルコキシ基としては、フェニルメトキシ、4-クロロフェニルメトキシ、3-メチルフェニルメトキシ、4-メトキシフェニルメトキシ、4-トリフルオロメチルフェニルメトキシ、2-フェニルエトキシ、4-クロロフェニルエトキシ、4-メチルフェニルエトキシ、4-メトキシフェニルエトキシ、4-トリフルオロメチルフェニルエトキシ、2-フェニルエトキシ等が挙げられる。

【0048】Gで置換されてもよいフェノキシ基としては、フェノキシ、4-クロロフェノキシ、4-メチルフェノキシ、4-メトキシフェノキシ、4-トリフルオロメチルフェノキシ等が挙げられる。

【0049】ジC<sub>1-6</sub>アルキルスルファモイル基としては、ジメチルスルファモイル、ジエチルスルファモイル等が挙げられ、Gで置換されてもよいナフチル基としては、1-ナフチル、2-ナフチル、2-クロロ-1-ナフチル等が挙げられる。

【0050】式S(O)<sub>n</sub>R<sub>5</sub>で表される基において、R<sub>5</sub>のC<sub>1-6</sub>アルキル基としては、メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、*sec*-ブチル、イソブチル、*tert*-ブチル、ペンチルおよびその異性体、ヘキシルおよびその異性体等が挙げられる。

【0051】C<sub>1-6</sub>ハロアルキル基としては、クロロメチル、フルオロメチル、ブロモメチル、ジクロロメチル、ジフルオロメチル、ジブロモメチル、トリクロロメチル、トリフルオロメチル、トリブロモメチル、トリクロロエチル、トルフルオロエチル、ペンタフルオロエチル等が挙げられる。

【0052】また、Gで置換されてもよいフェニル基としては、フェニル、4-メチルフェニル、4-クロロフェニル、4-メトキシフェニル、4-トリフルオロメチルフェニル等が挙げられる。

【0053】また前記式：A1~A14から選ばれる複素環基としては、1-チエニル、2-チエニル、1-フリル、2-フリル、2-ピロリル、3-ピロリル、1-メチル-3-ピロリル、1-エチル-3-ピロリル、2-チアゾリル、4-チアゾリル、5-チアゾリル、3-ピラゾリル、4-ピラゾリル、5-ピラゾリル、1-メチル-3-ピラゾリル、1-メチル-5-ピラゾリル、3-イソオキサゾリル、4-イソオキサゾリル、5-イソオキサゾリル、3-イソチアゾリル、4-イソチアゾリル、5-イソチアゾリル、2-イミダゾリル、4-イミダゾリル、1-メチル-2-イミダゾリル、1-メチル-4-イミダゾリル、2-ピリジル、3-ピリジル、2-ベンゾチエニル、3-ベンゾチエニル、2-ベンゾフラニル、3-ベンゾフラニル、2-インドリル、3-インドリル、1-メチル-2-インドリル、1-メチル-3-インドリル、2-ベンゾチアゾリル、2-ベンズイミダゾリル、1-メチルベンズイミダゾリル等が挙げられる。また、これらの複素環は、X及び/又はZで置換されていてもよい。

【0054】かかるX及びYの定義におけるハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素等が挙げられ、C<sub>1-6</sub>アルキル基としては、メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、*sec*-ブチル、イソブチル、*tert*-ブチル等が挙げられる。

【0055】C<sub>1-6</sub>ハロアルキル基としては、クロロメチル、フルオロメチル、ブロモメチル、ジクロロメチル、

ル、ジフルオロメチル、ジブロモメチル、トリクロロメチル、トリフルオロメチル、トリブロモメチル、トリクロロエチル、トリフルオロエチル、ペンタフルオロエチル等が挙げられる。

【0056】Zの定義における $C_{1-6}$ アルコキシ基としては、メトキシ、エトキシ、プロポキシ、イソプロポキシ、ブトキシ、sec-ブトキシ、イソブトキシ、t-ブトキシ等が挙げられる。

【0057】前記 $R_1$ 、 $R_2$ の定義において、ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素等が挙げられ、 $C_{1-6}$ アルキル基としては、メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、sec-ブチル、イソブチル、t-ブチル等が挙げられる。

【0058】 $C_{1-6}$ ハロアルキル基としては、クロロメチル、フルオロメチル、ブロモメチル、ジクロロメチル、ジフルオロメチル、ジブロモメチル、トリクロロメチル、トリフルオロメチル、トリブロモメチル、トリクロロエチル、トリフルオロエチル、ペンタフルオロエチル等が挙げられる。

【0059】 $C_{1-6}$ アルコキシ基としては、メトキシ、エトキシ、プロポキシ、イソプロポキシ、ブトキシ、sec-ブトキシ、イソブトキシ、t-ブトキシ等が挙げられ、 $C_{2-6}$ アルケニル基としては、エテニル、1-プロペニル、2-プロペニル、1-ブテニル、2-ブテニル、3-ブテニル、1-メチル-2-プロペニル、2-メチル-2-プロペニル、1-ペンテニル、2-ペンテニル、3-ペンテニル、4-ペンテニル、1-メチル-2-ブテニル、2-メチル-2-ブテニル、1-ヘキセニル、2-ヘキセニル、3-ヘキセニル、4-ヘキセニル、5-ヘキセニル等が挙げられる。

【0060】 $C_{2-6}$ ハロアルケニル基としては、3-クロロ-2-プロペニル、4-クロロ-2-ブテニル、4, 4-ジクロロ-3-ブテニル、4, 4-ジフルオロ-3-ブテニル、3, 3-ジクロロ-2-プロペニル等が挙げられる。

【0061】 $C_{2-6}$ アルキニル基としては、エチニル、1-プロピニル、2-プロピニル、1-ブチニル、2-ブチニル、3-ブチニル、1-メチル-2-プロピニル、2-メチル-3-ブチニル、1-ペンチニル、2-ペンチニル、3-ペンチニル、4-ペンチニル、1-メチル-2-ブチニル、2-メチル-3-ペンチニル、1-ヘキシニル、1, 1-ジメチル-2-ブチニル等が挙げられる。

【0062】 $C_{1-6}$ アルキルアミノ基としては、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジプロピルアミノ、ジブチルアミノ、エチルイソプロピルアミノ、メチルプロピルアミノ等が挙げられ、 $C_{3-6}$ シクロアルキル基としては、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシル等が挙げられる。

【0063】 $C_{1-6}$ アルコキシカルボニル基としては、

メトキシカルボニル、エトキシカルボニル、プロポキシカルボニル、イソプロポキシカルボニル、ブトキシカルボニル、t-ブトキシカルボニル等が挙げられ、 $C_{1-6}$ アルキルチオ基としては、メチルチオ、エチルチオ、n-プロピルチオ、イソプロピルチオ、n-ブチルチオ、イソブチルチオ、sec-ブチルチオ、t-ブチルチオ等が挙げられる。

【0064】 $C_{1-6}$ アルキルスルフィニル基としては、メチルスルフィニル、エチルスルフィニル、プロピルスルフィニル、ブチルスルフィニル等が挙げられ、 $C_{1-6}$ アルキルスルホニル基としては、メチルスルホニル、エチルスルホニル、プロピルスルホニル、ブチルスルホニル等が挙げられる。

【0065】前記 $R_3$ 、 $R_4$ の定義において、 $C_{1-6}$ アルキルカルボニル基としては、アセチル、エチルカルボニル、プロピルカルボニル、ブチルカルボニル等が挙げられ、 $C_{1-6}$ アルコキシカルボニル基としては、メトキシカルボニル、エトキシカルボニル、プロポキシカルボニル、イソプロポキシカルボニル、ブトキシカルボニル、t-ブトキシカルボニル等が挙げられる。

【0066】 $C_{1-6}$ アルキルカルバモイル基としては、ジメチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、ジプロピルカルバモイル、ジブチルカルバモイル等が挙げられ、Gで置換されてもよいベンゾイル基としては、ベンゾイル、4-メチルベンゾイル、4-クロロベンゾイル、4-メトキシベンゾイル、4-トリフルオロメチルベンゾイル等が挙げられ、 $C_{1-6}$ アルキルスルホニル基としては、メチルスルホニル、エチルスルホニル、プロピルスルホニル、ブチルスルホニル等が挙げられる。

【0067】 $C_{1-6}$ アルキルスルファモイル基としては、ジメチルスルファモイル、ジエチルスルファモイル、ジプロピルスルファモイル、ジブチルスルファモイル等が挙げられる。

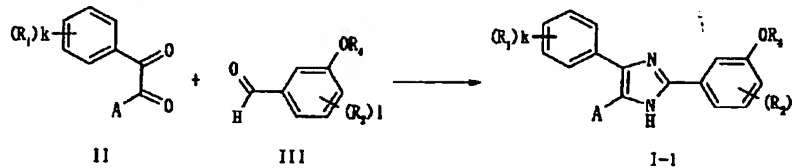
【0068】Gで置換されてもよいフェニルスルホニル基としては、フェニルスルホニル、4-メチルフェニルスルホニル、4-クロロフェニルスルホニル、4-メトキシフェニルスルホニル、4-トリフルオロメチルフェニルスルホニル等が挙げられ、 $C_{1-6}$ アルコキシメチル基としては、メトキシメチル、エトキシメチル、プロポキシメチル、イソプロポキシメチル、ブトキシメチル、sec-ブトキシメチル、イソブトキシメチル、t-ブトキシメチル等が挙げられる。

【0069】 $C_{1-6}$ アルキルカルボキシメチル基としては、メチルカルボキシメチル、エチルカルボキシメチル、プロピルカルボキシメチル、ブチルカルボキシメチル等が挙げられる。

【0070】本発明化合物は以下の方法により製造することができる。

(製造法1) 本発明化合物[I]のうち、Aが水素原子、(ハロゲン原子、置換されてもよいフェニル基、置

換されてもよいフェノキシ基、置換されてもよいフェニルチオ基、 $C_{3-6}$ シクロアルキル基で置換されてもよい) $C_{1-10}$ アルキル基、( $C_{1-10}$ アルキル基、ハロゲン原子、置換されてもよいフェニル基で置換されてもよい) $C_{3-10}$ シクロアルキル基、(ハロゲン原子もしくは置換されてもよいフェニル基で置換されてもよい)C



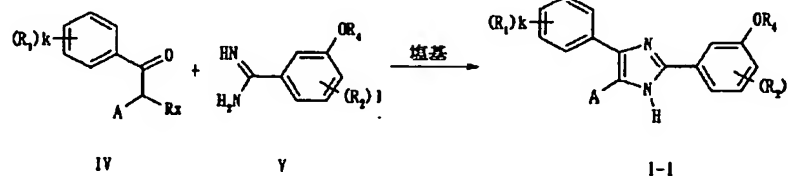
【0072】(式中 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_4$ 、 $k$ 及び $l$ は前記と同じ意味を表わす。)

即ち、一般式【I】で表わされる $\alpha$ -ジケトン類と一般式【III】で表わされるベンズアルデヒド誘導体及び酢酸アンモニウム、アンモニア水あるいはアンモニアを、適当な溶媒中で室温～150℃で反応させることにより、一般式【I-1】で表わされる化合物を製造できる。

【0073】この反応に用いることができる溶媒としては、酢酸等の有機酸、メタノール等のアルコール類、水等が挙げられる。

【0074】また酢酸アンモニウムを加える代わりに、アンモニア水又はアンモニアを氷酢酸に添加して用いることもできる。

【0075】なお、出発原料である一般式【II】で表わされる $\alpha$ -ジケトン類は、公知の方法、例えば、①Tetrahedron. Lett., 24(23)2375(1983)に記載の方法に準じて、対応するアミノ酸と対応するアルキル金属、アリール金属あるいはアリール金属試薬から、②Tetrahedron. Lett., 2941(1971)に記載の方法に準じて、対応するハロゲン化アリール類とアリールアセチレン類から、③J. Org. Chem., 53, 129(1988)、J. Org. Chem., 24, 516(1959)、Tetrahedron. Lett., 1175(1972)、Org. Syn., 32, 35(1952)、J. Org. Chem., 14, 836(1949)、J. Am. Chem. Soc., 71, 3760(1949)、J. Am. Chem. Soc., 71, 1585(1949)に記載の方法に準じて、対応する $\alpha$ -アリールケトン類をセレン酸化することにより製造することができる。



【0079】(式中 $A$ 、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_4$ 、 $k$ 及び $l$ は前

2-10アルケニル基、置換されてもよいナフチル基、または式A1～A14で表される複素環基で、 $R_3$ が水素原子である化合物は次の方法によって製造することができる。

【0071】

【化13】

【0076】また $A$ が $CF_3$ の化合物は、J. Org. Chem., 53(1)129(1988)に記載の方法に準じて製造することができる。

【0077】(製造法2)本発明化合物【I】のうち、 $A$ が水素原子、シアノ基、ニトロ基、(ハロゲン原子、置換されてもよいフェニル基、置換されてもよいフェノキシ基、置換されてもよいフェニルチオ基、 $C_{3-6}$ シクロアルキル基で置換されてもよい) $C_{1-10}$ アルキル基、( $C_{1-10}$ アルキル基、ハロゲン原子、置換されてもよいフェニル基で置換されてもよい) $C_{3-10}$ シクロアルキル基、(ハロゲン原子もしくは置換されてもよいフェニル基で置換されてもよい) $C_{2-10}$ アルケニル基、(ハロゲン原子、置換されてもよいフェニル基もしくは $C_{1-6}$ トリアルキルシリル基で置換されてもよい) $C_{2-10}$ アルキニル基、ヒドロキシイミノ基、 $C_{1-10}$ アルコキシイミノ基、 $C_{1-6}$ アルコキシカルボニル基、ジ $C_{1-6}$ アルキルカルバモイル基、(ハロゲン原子もしくはフェニル基で置換されてもよい) $C_{1-10}$ アルコキシ基、置換されてもよいフェノキシ基、(ハロゲン原子もしくは置換されてもよいフェニル基で置換されてもよい) $C_{1-6}$ アルキルチオ基、(ハロゲン原子もしくは置換されてもよいフェニル基で置換されてもよい) $C_{1-6}$ アルキルスルフィニル基、(ハロゲン原子もしくは置換されてもよいフェニル基で置換されてもよい) $C_{1-6}$ アルキルスルホニル基、置換されてもよいフェニルチオ基、置換されてもよいフェニルスルフィニル基、置換されてもよいフェニルスルホニル基、ジ $C_{1-6}$ アルキルスルファモイル基、置換されてもよいナフチル基、または式A1～A14で表される複素環基で、 $R_3$ が水素原子である化合物は、次の方法によっても製造することができる。

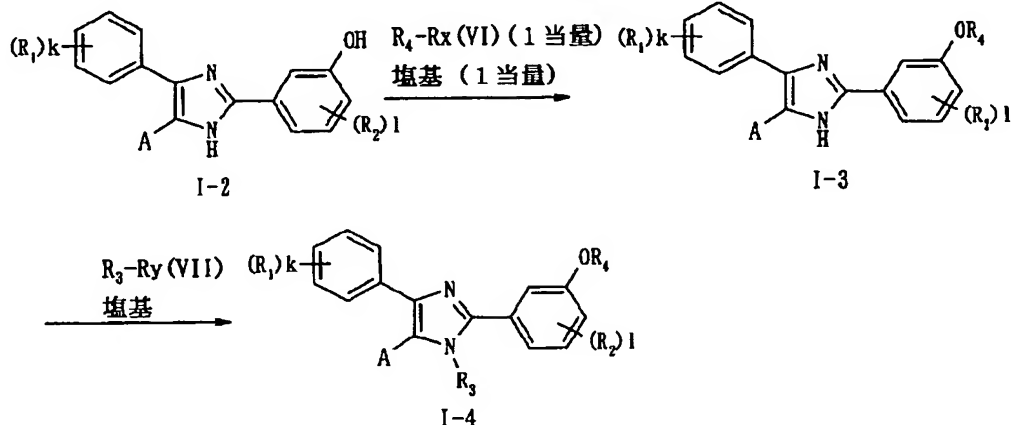
【0078】

【化14】

記と同じ意味を表わし、 $R_X$ はハロゲン原子を表す。)

【0080】即ち、一般式(IV)で表わされる2位にハロゲンが置換した2-アセトフェノン類と一般式(V)で表わされるベンズアミジン誘導体又はその塩を、適当な塩基存在下、適当な溶媒中で室温～150℃で反応させることにより、一般式【I-1】で表わされる化合物を製造することができる。

【0081】反応に用いることのできる溶媒としては、水、メタノール、エタノール等のアルコール類、テトラヒドロフラン (THF) 等のエーテル類、酢酸エチル等のエステル類、N, N-ジメチルホルムアミド (DMF)、ジメチルスルホキシド (DMSO)、アセトニトリル等が挙げられる。



【0085】(式中、A、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、k及びlは前記と同じ意味を表わし、R<sub>x</sub>、R<sub>y</sub>はハロゲン原子を表す。)

【0086】前記製造法1又は2で得られる一般式(I-2)で表わされる化合物を、1当量の一般式(VI)で表わされるハロゲン化物R<sub>3</sub>-R<sub>x</sub>と、1当量の適当な塩基存在下、適当な溶媒中で室温～150℃で反応させることにより、一般式(I-3)で表わされる化合物を製造できる。

【0087】さらに、一般式(I-3)で表わされる化合物を、再度一般式(VII)で表わされるハロゲン化物R<sub>4</sub>-R<sub>y</sub>と、適当な塩基存在下、適当な溶媒中で室温～150℃で反応させることにより、一般式(I-4)で表わされる化合物を製造できる。

【0088】一般式(I-2)で表わされる化合物と一般式(VI)で表わされるハロゲン化物R<sub>3</sub>-R<sub>x</sub>との反応、及び一般式(I-3)で表わされる化合物と一般式(VII)で

【0082】また、この反応に使用される塩基としては、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等の炭酸塩、水酸化ナトリウムなどの金属水酸化物、ナトリウムエチレート、*tert*-ブトキシカリウムなどの金属アルコキシド、トリエチルアミン、ピリジン等の有機塩基等を例示することができる。

【0083】(製造法3) 本発明化合物【I】のうち、R<sub>4</sub>が水素原子でなく、R<sub>3</sub>が水素原子である化合物(I-3)、及びR<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>が水素原子でない化合物(I-4)は、次の方法によって製造することができる。

【0084】

【化15】

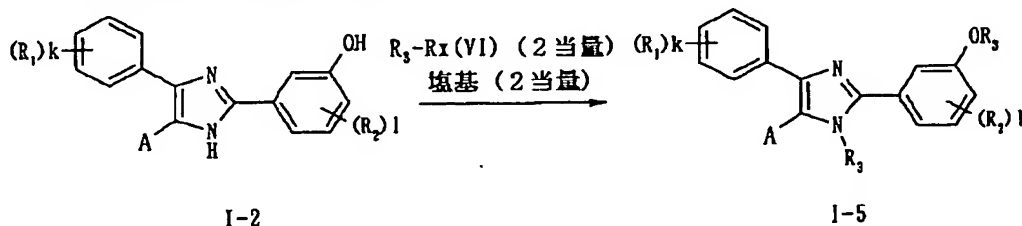
表わされるハロゲン化物R<sub>4</sub>-R<sub>y</sub>との反応に用いることのできる溶媒としては、水、メタノール、エタノール等のアルコール類、THF等のエーテル類、酢酸エチル等のエステル類、DMF、DMSO、アセトニトリル等が挙げられる。

【0089】また、この反応に使用される塩基としては、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等の炭酸塩、水酸化ナトリウム等の金属水酸化物、ナトリウムエチレート、*tert*-ブトキシカリウムなどの金属アルコキシド、トリエチルアミン、ピリジン等の有機塩基等を例示することができる。

【0090】またR<sub>3</sub>とR<sub>4</sub>が同じ基である化合物(I-5)は、一般式(I-3)で表わされる化合物と2当量のハロゲン化物、及び2当量の塩基を反応させることによっても製造できる(下記反応式参照)。

【0091】

【化16】



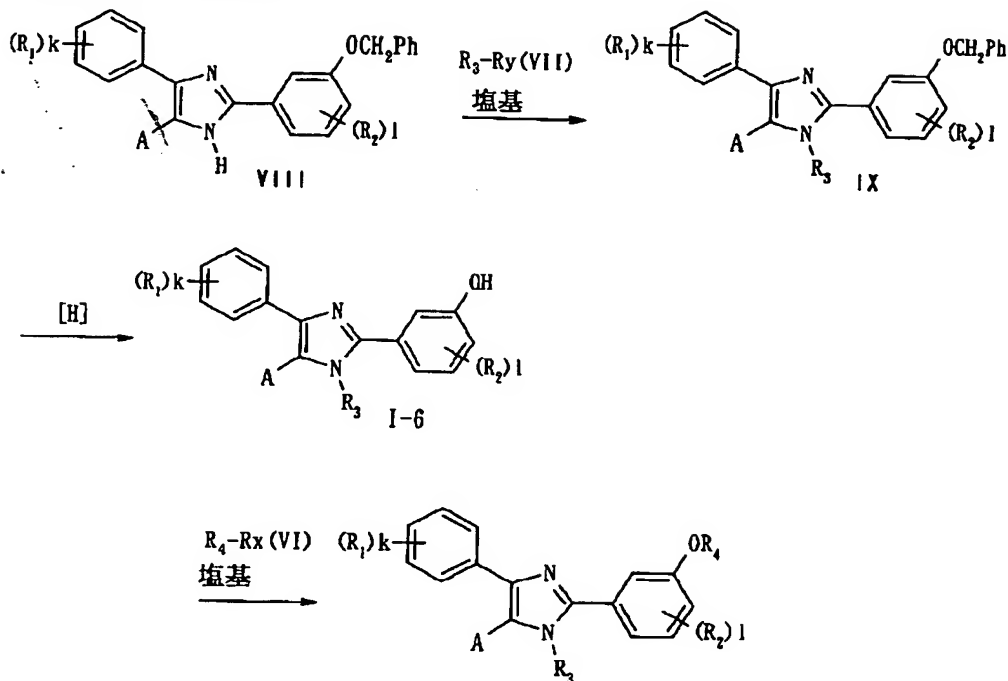
【0092】(製造法4) 本発明化合物【I】のうち、

R<sub>4</sub>が水素原子でR<sub>3</sub>が水素原子でない化合物(I-

6)  $R_3$ 、 $R_4$ が水素原子でない化合物 (I-4) は次の方法によって製造することができる。

【0093】

【化17】



【0094】(式中、 $A$ 、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_4$ 、 $k$ 及び1は前記と同じ意味を表わし、 $R_x$ 、 $R_y$ はハロゲン原子を表す。)

【0095】先ず、前記製造法1又は製造法2に記載した方法に準じ、水酸基がベンジル基で保護された一般式(VIII)で表わされる化合物を合成し、続いて一般式(VI)で表わされるハロゲン化物 $R_3-R_y$ と、適当な塩基存在下、適当な溶媒中で室温～150℃で反応させることにより、一般式(IX)で表わされる化合物を合成する。

【0096】さらに、水素雰囲気下、適当な触媒の存在下、適当な溶媒中で室温～100℃にて水素添加による脱ベンジル化を行うことにより、一般式(I-6)で表わされる化合物を得る。

【0097】次いで、一般式(I-6)で表わされる化合物を、再度一般式(VI)で表わされるハロゲン化物 $R_4-R_x$ と、適当な塩基存在下、適当な溶媒中で室温～150℃で反応させることにより、一般式(I-4)で表わされる化合物を製造することができる。

【0098】一般式(VIII)で表わされる化合物と一般式(VII)で表わされるハロゲン化物 $R_3-R_y$ との反応、及び一般式(IX)で表わされる化合物と一般式(VI)で表わさ

I-4

れるハロゲン化物 $R_4-R_x$ との反応に用いることのできる溶媒としては、水、メタノール、エタノール等のアルコール類、THF等のエーテル類、酢酸エチル等のエステル類、DMF、DMSO、アセトニトリル等が挙げられる。

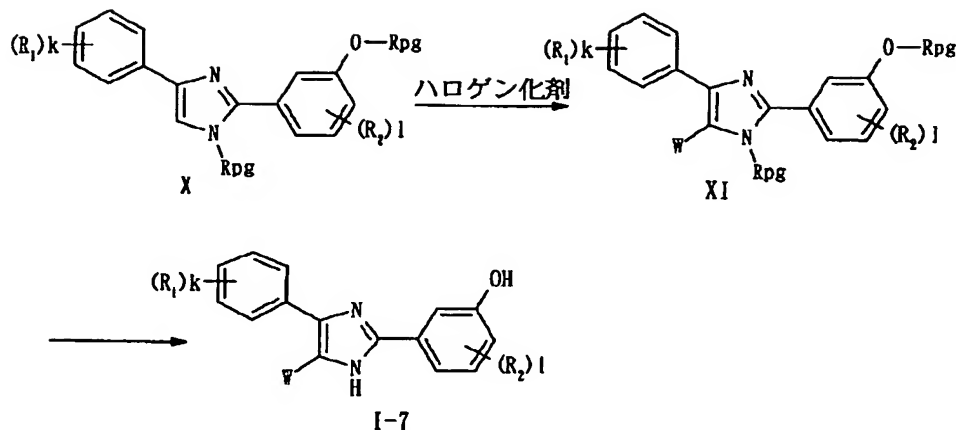
【0099】この反応に使用される塩基としては、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等の炭酸塩、水酸化ナトリウム等の金属水酸化物、ナトリウムエチラート、 $t$ -ブトキシカリウム等の金属アルコキシド、トリエチルアミン、ピリジン等の有機塩基等を例示することができる。

【0100】また、水素添加による脱ベンジル化に用いることのできる触媒としては、活性炭担持パラジウム、ロジウム、ニッケル、ルテニウム、酸化白金等が使用できる。また用いることのできる溶媒としては、エタノール等のアルコール類が使用できる。

【0101】(製造法5)本発明化合物[I]のうち、 $A$ がハロゲン原子の化合物(I-7)は以下の方法によって製造できる。

【0102】

【化18】



【0103】(式中、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $k$ 及び $l$ は前記と同じ意味を表し、 $Rpg$ は保護基を表し、 $W$ はハロゲン原子を表す。)

【0104】前記製造法1により得られるAが水素原子の化合物を、適当な保護基( $Rpg$ )で保護した一般式(X)で表される化合物を、適当な溶媒中、適当なハロゲン化剤を用い0℃～100℃で処理することにより、一般式(XI)で表わされる化合物へ誘導し、さらに保護基( $Rpg$ )を脱離させることにより、Aがハロゲン原子の化合物(I-7)を製造することができる。

【0105】このハロゲン化に用いることのできる溶媒としては、クロロホルム、ジクロロメタン等のハロゲン化炭化水素類、酢酸等の有機酸類等が挙げられる。

【0106】ハロゲン化剤としては、塩素、臭素等のハロゲン、塩化スルフリル等のハロゲン化イオウ化合物、N-ブロモスクシンイミド(NBS)、N-クロロスク

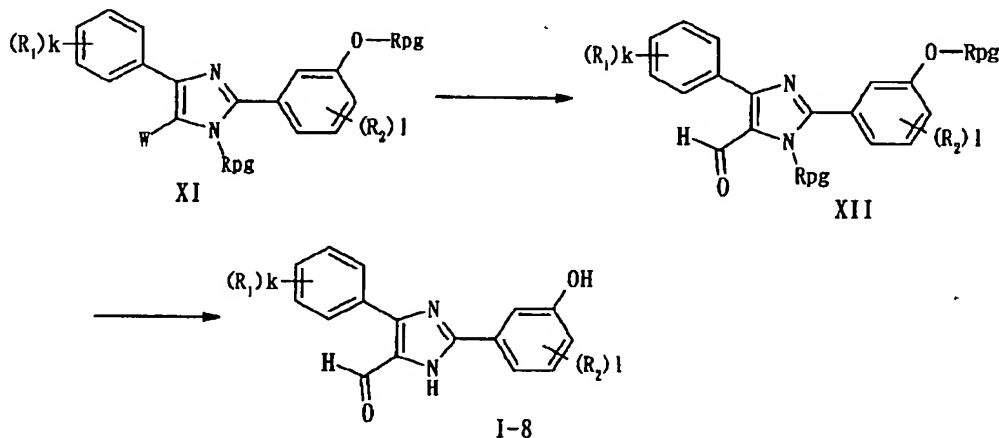
シンイミド(NCS)等のハロゲン化イミド化合物等が挙げられる。

【0107】また、この反応に用いることのできる保護基( $Rpg$ )としては、メキシメチル基、1-エトキシエチル基等のアルコキシアルキル基類、トシル基等のベンゼンスルホニル基類、アセチル基、ベンゾイル基等のアシル基類、 $\alpha$ -ブトキシカルボニル基等のアルコキシカルボニル基類、トリメチルシリル基等のトリアルキルシリル基類及びベンジル基類等が挙げられる。これらは、いずれも文献既知の方法に準じて合成することができる。

【0108】(製造法6)本発明化合物[I]のうち、Aがホルミル基の化合物(I-8)は以下の方法によって製造できる。

【0109】

【化19】



【0110】(式中 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $k$ 、 $l$ 及び $Rpg$ は前記と同じ意味を表す。)

【0111】前記製造法5により得られる化合物(XI)を適当な溶媒中、-100℃～0℃にて適当なリチウム化試薬を作用させ、続いて適当なホルミル化剤を反応させて一般式(XII)で表わされる化合物へ誘導し、さらに適当な条件により脱保護を行うことにより、Aがホルミル基である化合物(I-9)を製造することができ

る。

【0112】この反応に用いることのできる溶媒として、ジエチルエーテル、THF等のエーテル類が挙げられる。

【0113】用いることのできるリチウム化剤としては、 $n$ -ブチルリチウム等のアルキルリチウム類、フェニルリチウム等のアリールリチウム類、リチウムジイソプロピルアミド(LDA)等のリチウムアミド類が挙げ

られる。

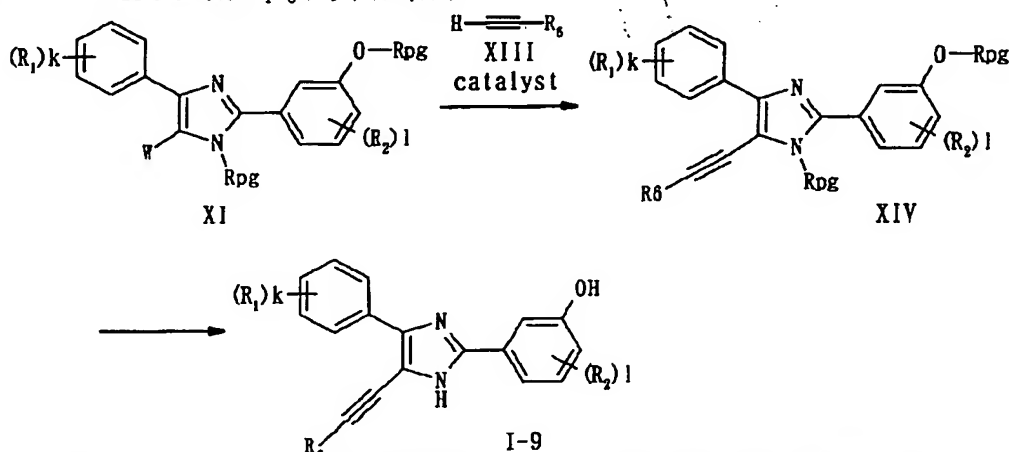
【0114】また、用いることのできるホルミル化剤としては、ジメチルホルムアミド等のホルムアミド類、蟻酸エチルなどの蟻酸エステル類等が挙げられる。

【0115】（製造法7）Aが、（ハロゲン原子、置換されてもよいフェニル基もしくはC<sub>1-6</sub>トリアルキルシ

リル基で置換されてもよい）C<sub>2-10</sub>アルキニル基である化合物（I-9）は、次の方法により製造することができる。

【0116】

【化20】



【0117】〔式中R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、k、l、Rpg及びWは前記と同じ意味を表わす。R<sub>6</sub>はC<sub>1-6</sub>アルキル基、C<sub>1-6</sub>ハロアルキル基、置換されてもよいC<sub>1-6</sub>フェニルアルキル基、トリ（C<sub>1-3</sub>アルキル）シリル基を表す。〕

【0118】前記製造法5により得られる一般式（XI）で表される化合物を、適当な溶媒中、適当な触媒存在下、一般式（XIII）で表わされるアセチレン類と反応させることにより、一般式（XIV）で表わされる化合物へ誘導し、さらに適当な条件で脱保護することにより、一般式（I-10）で表わされる化合物を製造することができる。

【0119】この反応に用いることのできる溶媒としては、トリエチルアミン等のトリアルキルアミン類、あるいはトリアルキルアミン類とTHF等のエーテル類、ペ

ンゼン等の芳香族炭化水素類、ジクロロメタン等のハロゲン化炭化水素類との混合溶媒、DMF等が挙げられる。

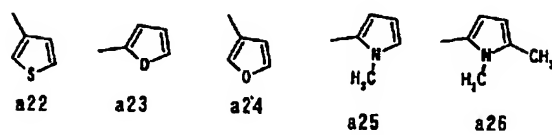
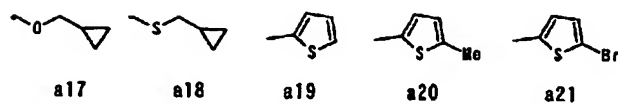
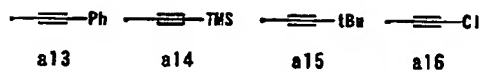
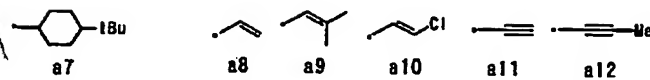
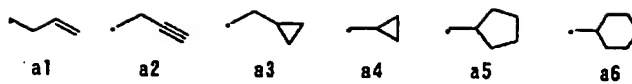
【0120】また、この反応に用いることのできる触媒としては、Pd（PPh<sub>3</sub>）<sub>4</sub>等のパラジウム錯体、CuI等の銅化合物類等が挙げられる。

【0121】上記の如くして製造される本発明の化合物の代表例を、第1表及び第2表に示す。なお、表中の略号、記号は下記の意味を表す。

Me: メチル、Et: エチル、Ph: フェニル、AC: アセチル  
TMS: トリメチルシリル、t Bu: ターシャリーブチル

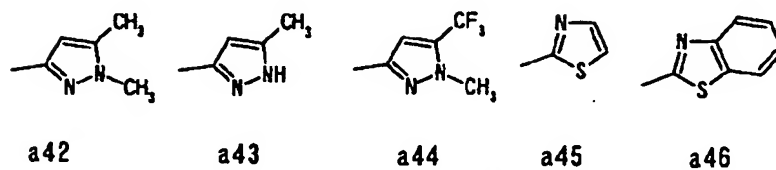
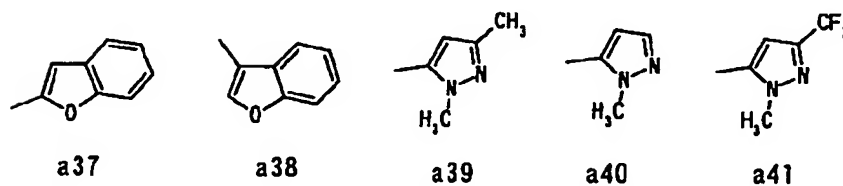
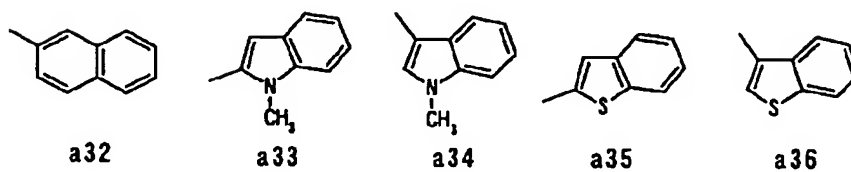
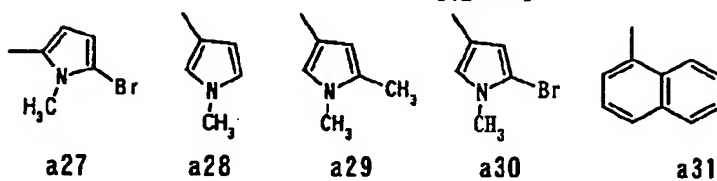
【0122】

【化21】



【0123】

【化22】

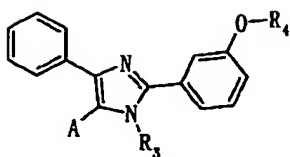


【0124】

【表1】



第 1 表



No.	A	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>
I-1	H	H	H
I-2	Me	H	H
I-3	Et	H	H
I-4	(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	H	H
I-5	(CH <sub>2</sub> ) <sub>3</sub> CH <sub>3</sub>	H	H
I-6	(CH <sub>2</sub> ) <sub>5</sub> CH <sub>3</sub>	H	H
I-7	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	H
I-8	CH(CH <sub>3</sub> )C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H
I-9	CH(CH <sub>3</sub> )C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	H	H
I-10	CH <sub>2</sub> CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	H
I-11	CH <sub>2</sub> CH(CH <sub>3</sub> )C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H
I-12	CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	H
I-13	C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	H	H
I-14	C(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H
I-15	CH(CH <sub>3</sub> )CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	H
I-16	CH <sub>2</sub> C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	H	H
I-17	C(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	H	H
I-18	CH(CH <sub>3</sub> )CH(CH <sub>3</sub> )C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H
I-19	CH(CH <sub>3</sub> )CH <sub>2</sub> CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	H
I-20	CH <sub>2</sub> C(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H
I-21	CH <sub>2</sub> CH(CH <sub>3</sub> )CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	H
I-22	CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	H	H
I-23	CH <sub>2</sub> Ph	H	H
I-24	CH(CH <sub>3</sub> )Ph	H	H

【 0125 】

【表2】

第1表 (つづき)

No.	A	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>
I-25	$\text{C}(\text{CH}_3)_2\text{Ph}$	H	H
I-26	$\text{CH}_2\text{OPh}$	H	H
I-27	$\text{CH}_2\text{SPh}$	H	H
I-28	a1	H	H
I-29	a2	H	H
I-30	a3	H	H
I-31	a4	H	H
I-32	a5	H	H
I-33	a6	H	H
I-34	a7	H	H
I-35	a8	H	H
I-36	a9	H	H
I-37	a10	H	H
I-38	a11	H	H
I-39	a12	H	H
I-40	a13	H	H
I-41	a14	H	H
I-42	a15	H	H
I-43	a16	H	H
I-44	$\text{OCH}_3$	H	H
I-45	$\text{OC}_2\text{H}_5$	H	H
I-46	$\text{OC}_3\text{H}_7$	H	H
I-47	$\text{OCH}(\text{CH}_3)_2$	H	H
I-48	$\text{OC}(\text{CH}_3)_3$	H	H
I-49	$\text{OCH}_2\text{Ph}$	H	H
I-50	a17	H	H
I-51	$\text{OPh}$	H	H
I-52	$\text{SCH}_3$	H	H
I-53	$\text{SC}_2\text{H}_5$	H	H
I-54	$\text{SC}_3\text{H}_7$	H	H

【0126】

【表3】

第1表 (つづき)

No.	A	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>
I-55	SCH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	H
I-56	SC(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	H	H
I-57	SCH <sub>2</sub> Ph	H	H
I-58	a18	H	H
I-59	SPh	H	H
I-60	F	H	H
I-61	Cl	H	H
I-62	Br	H	H
I-63	I	H	H
I-64	CH <sub>2</sub> Cl	H	H
I-65	CCl <sub>3</sub>	H	H
I-66	CF <sub>3</sub>	H	H
I-67	CHO	H	H
I-68	C=NOH	H	H
I-69	C=NOEt	H	H
I-70	COOH	H	H
I-71	COOC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H
I-72	CON(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	H
I-73	SOCH <sub>3</sub>	H	H
I-74	SO <sub>2</sub> Ph	H	H
I-75	SOPh	H	H
I-76	SO <sub>2</sub> N(Me) <sub>2</sub>	H	H
I-77	NO <sub>2</sub>	H	H
I-78	2-Pyridyl	H	H
I-79	3-Pyridyl	H	H
I-80	a19	H	H
I-81	a20	H	H
I-82	a21	H	H
I-83	a22	H	H
I-84	a23	H	H

【0127】

【表4】

第1表 (つづき)

No.	A	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>
I-85	a24	H	H
I-86	a25	H	H
I-87	a26	H	H
I-88	a27	H	H
I-89	a28	H	H
I-90	a29	H	H
I-91	a30	H	H
I-92	a31	H	H
I-93	a32	H	H
I-94	a33	H	H
I-95	a34	H	H
I-96	a35	H	H
I-97	a36	H	H
I-98	a37	H	H
I-99	a38	H	H
I-100	a39	H	H
I-101	a40	H	H
I-102	a41	H	H
I-103	a42	H	H
I-104	a43	H	H
I-105	a44	H	H
I-106	a45	H	H
I-107	a46	H	H
I-108	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	Ac	H
I-109	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	Ac
I-110	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	Ac	Ac
I-111	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	COOEt	H
I-112	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	COOEt
I-113	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	COOEt	COOEt
I-114	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	CON(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H

【0128】

【表5】

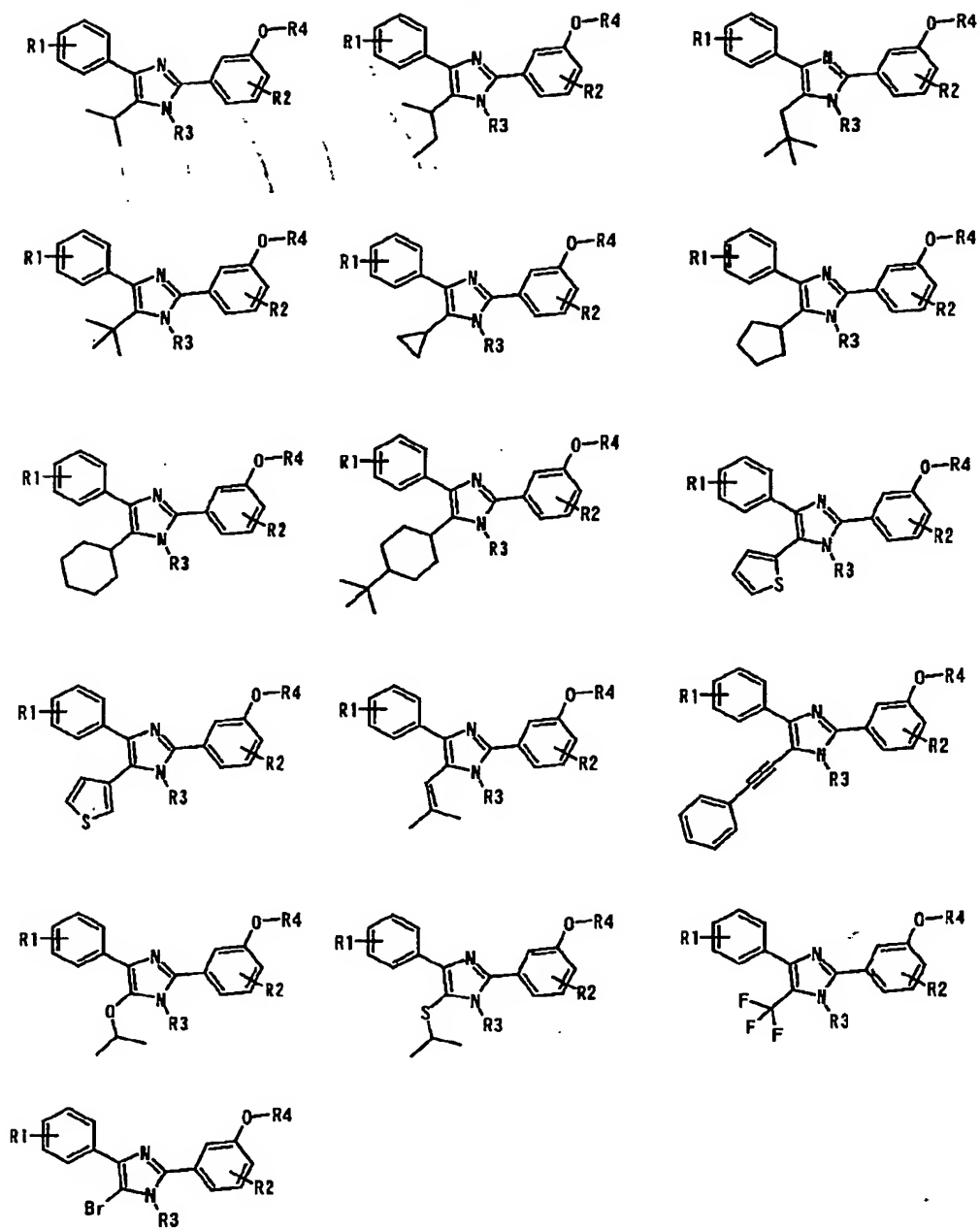
第1表 (つづき)

No.	A	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>
I-115	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	CON(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
I-116	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	CON(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	CON(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
I-117	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	SO <sub>2</sub> Ph	H
I-118	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	SO <sub>2</sub> Ph
I-119	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	SO <sub>2</sub> Ph	SO <sub>2</sub> Ph
I-120	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	SO <sub>2</sub> N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H
I-121	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	SO <sub>2</sub> N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
I-122	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	SO <sub>2</sub> N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	SO <sub>2</sub> N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
I-123	a6	Ac	H
I-124	a6	H	Ac
I-125	a6	Ac	Ac
I-126	a6	COOEt	H
I-127	a6	H	COOEt
I-128	a6	COOEt	COOEt
I-129	a6	CON(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H
I-130	a6	H	CON(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
I-131	a6	CON(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	CON(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
I-132	a6	SO <sub>2</sub> Ph	H
I-133	a6	H	SO <sub>2</sub> Ph
I-134	a6	SO <sub>2</sub> Ph	SO <sub>2</sub> Ph
I-135	a6	SO <sub>2</sub> N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H
I-136	a6	H	SO <sub>2</sub> N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
I-137	a6	SO <sub>2</sub> N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	SO <sub>2</sub> N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>

【0129】

【表6】

第 2 表



で表わされる化合物について以下の表に例示した。

【0130】

【表7】

第 2 表

化合物 番号	(R <sub>1</sub> )k	(R <sub>2</sub> )l	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>
II-1	H	2-F	H	H
II-2	H	4-F	H	H
II-3	H	5-F	H	H
II-4	H	6-F	H	H
II-5	H	2-Cl	H	H
II-6	H	4-Cl	H	H
II-7	H	5-Cl	H	H
II-8	H	6-Cl	H	H
II-9	H	2-Me	H	H
II-10	H	4-Me	H	H
II-11	H	5-Me	H	H
II-12	H	6-Me	H	H
II-13	2-Me	H	H	H
II-14	2-F	H	H	H
II-15	2-Cl	H	H	H
II-16	3-Me	H	H	H
II-17	3-F	H	H	H
II-18	3-Cl	H	H	H
II-19	4-Me	H	H	H
II-20	4-F	H	H	H
II-21	4-Cl	H	H	H
II-22	4-CF <sub>3</sub>	H	H	H
II-23	4-OMe	H	H	H
II-24	2,3-Me <sub>2</sub>	H	H	H
II-25	2,4-Me <sub>2</sub>	H	H	H
II-26	2,5-Me <sub>2</sub>	H	H	H
II-27	2,6-Me <sub>2</sub>	H	H	H
II-28	3,4-Me <sub>2</sub>	H	H	H
II-29	3,5-Me <sub>2</sub>	H	H	H

【0131】

【表8】

第2表(つづき)

化合物 番号	(R <sub>1</sub> )k	(R <sub>2</sub> )l	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>
II-30	2,3-Cl <sub>2</sub>	H	H	H
II-31	2,4-Cl <sub>2</sub>	H	H	H
II-32	2,5-Cl <sub>2</sub>	H	H	H
II-33	2,6-Cl <sub>2</sub>	H	H	H
II-34	2-Cl,4-Me	H	H	H
II-35	3-Cl,4-Me	H	H	H
II-36	2-F,4-Me	H	H	H
II-37	3-F,4-Me	H	H	H
II-38	4-Me	H	Ac	H
II-39	4-Me	H	H	Ac
II-40	4-Me	H	Ac	Ac
II-41	4-Me	H	COOEt	H
II-42	4-Me	H	H	COOEt
II-43	4-Me	H	COOEt	COOEt
II-44	4-Me	H	CON(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H
II-45	4-Me	H	H	CON(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
II-46	4-Me	H	CON(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	CON(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
II-47	4-Me	H	SO <sub>2</sub> Ph	H
II-48	4-Me	H	H	SO <sub>2</sub> Ph
II-49	4-Me	H	SO <sub>2</sub> Ph	SO <sub>2</sub> Ph
II-50	4-Me	H	SO <sub>2</sub> N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H
II-51	4-Me	H	H	SO <sub>2</sub> N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
II-52	4-Me	H	SO <sub>2</sub> N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	SO <sub>2</sub> N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>

【0132】(農園芸用殺菌剤)前記一般式[I']で表される化合物又はその塩を有効成分として含有する本発明の農園芸用殺菌剤は、広範囲の種類の糸状菌、例えば、藻菌類(Oomycetes)、子う(囊)菌類(Ascomycetes)、不完全菌類(Deute

romycetes)、担子菌類(Basidiomycetes)に属する菌に対しすぐれた殺菌力を有する。

【0133】例えば、

テンサイ 褐斑病(Cercospora beticola)  
ラッカセイ 褐斑病(Mycosphaerella arachidi)  
黒渋病(Mycosphaerella berkelei)  
キュウリ うどんこ病(Sphaerotheca fuliginea)  
つる枯病(Mycosphaerella melonis)  
菌核病(Sclerotinia sclerotiorum)  
灰色かび病(Botrytis cinerea)  
黒星病(Cladosporium cucumerinum)  
べと病(Pseudoperonospora cubensis)、

【0134】

トマト 灰色かび病(Botrytis cinerea)



- ナス 葉かび病 (Cladosporium fulvum)  
 疫病 (Phytophthora infestans)  
 灰色かび病 (Botrytis cinerea)  
 黒枯病 (Corynespora melongenae)  
 うどんこ病 (Erysiphe cichoracearum)  
 イチゴ 灰色かび病 (Botrytis cinerea)  
 うどんこ病 (Sphaerotheca humuli)  
 タマネギ 灰色腐敗病 (Botrytis allii)  
 灰色かび病 (Botrytis cinerea)  
 インゲン 菌核病 (Sclerotinia sclerotiorum)  
 灰色かび病 (Botrytis cinerea)
- 【0135】
- りんご うどんこ病 (Podosphaera leucotricha)  
 黒星病 (Venturia inaequalis)  
 モニリア病 (Monilinia mali)  
 カキ うどんこ病 (Phyllactinia kakicola)  
 炭そ病 (Gloeosporium kaki)  
 角斑落葉病 (Cercospora kaki)
- 【0136】
- モモ・オウトウ 灰星病 (Monilinia fructicola)  
 ブドウ 灰色かび病 (Botrytis cinerea)  
 うどんこ病 (Uncinula necator)  
 晩腐病 (Glomerella cingulata)  
 べと病 (Plasmopara viticola)  
 ナシ 黒星病 (Venturia nashicola)  
 赤星病 (Gymnosporangium asiaticum)  
 黒斑病 (Alternaria kikuchiana)  
 チャ 輪斑病 (Pestalotia theae)  
 炭そ病 (Colletotrichum theae-sinensis)
- 【0137】
- カンキツ そうか病 (Elsinoe fawcetti)  
 青かび病 (Penicillium italicum)  
 緑かび病 (Penicillium digitatum)  
 灰色かび病 (Botrytis cinerea)  
 オオムギ うどんこ病 (Erysiphe graminis f. sp. hordei)  
 裸黒穂病 (Ustilago nuda)
- 【0138】
- コムギ 赤かび病 (Gibberella zeae)  
 赤さび病 (Puccinia recondita)  
 斑点病 (Cochliobolus sativus)  
 眼紋病 (Pseudocercospora herpotrichoides)  
 ふ枯病 (Leptosphaeria nodorum)  
 うどんこ病 (Erysiphe graminis f. sp. tritici)  
 紅色雪腐病 (Micronectriella nivali)

## 【0139】

s)

イネ いもち病 (*Pyricularia oryzae*)  
 紋枯病 (*Rhizoctonia solani*)  
 馬鹿苗病 (*Gibberella fujikuroi*)、  
 ごま葉枯病 (*Cochliobolus niyabeanu*

s)、

タバコ 菌核病 (*Sclerotinia sclerotiorum*)

)

うどんこ病 (*Erysiphe cichoracearum*)

)

チューリップ 灰色かび病 (*Botrytis cinerea*)

ベントグラス 雪腐大粒菌核病 (*Sclerotinia borealis*)、

)

## 【0140】

オーチャードグラス うどんこ病 (*Erysiphe graminis*)、  
 ダイズ 紫斑病 (*Cercospora kikuchii*)、  
 ジャガイモ 疫病 (*Phytophthora infestans*)、  
 )、等の防除に使用することができる。

これらの内、特に適用がより好ましい病害としては、トマト疫病、ブドウベと病等が挙げられる。

【0141】また、近年種々の病原菌においてベンズイミダゾール系殺菌剤やジカルボキシイミド系殺菌剤等に対する耐性が発達し、それらの薬剤の効力不足を生じており、耐性菌にも有効な薬剤が望まれている。本発明の化合物は、それら薬剤に対し感受性の病原菌のみならず、耐性菌にも優れた殺菌効果を有する薬剤である。

【0142】例えば、本発明化合物は、フェニルアミド系殺菌剤 (例えば、メトラキシル、オキサジキシル) に体制を示すジャガイモ疫病菌 (*Phytophthora rainfestans*) やブドウベと病菌 (*Plasmopara viticola*) 等に対しても感受性菌と同様に有効である。

【0143】本発明化合物は、水棲生物が船底、魚網等の水中接触物に付着するのを防止するための防汚剤として使用することもできる。

【0144】さらにまた、本発明化合物を塗料や繊維等に混入させることで、壁や浴槽、あるいは靴や衣服の防菌、防黴剤として使用することもできる。

【0145】本発明化合物を実際に施用する際には、他成分を加えず純粋な形で使用できるし、また農薬として使用する目的で一般の農薬のとり得る形態、即ち、水和剤、粒剤、粉剤、乳剤、水溶剤、懸濁剤、フロアブル等の形態で使用することもできる。

【0146】添加剤及び担体としては、固型剤を目的とする場合は、大豆粉、小麦粉等の植物性粉末、珪藻土、燐灰石、石こう、タルク、ベントナイト、パイロフィライト、クレイ等の鉱物性微粉末、安息香酸ソーダ、尿素、芒硝等の有機及び無機化合物が使用される。

【0147】液体の剤型を目的とする場合は、クロシ

ン、キシレン及びソルベントナフサ等の石油留分、シクロヘキサン、シクロヘキサノン、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、アルコール、アセトン、トリクロロエチレン、メチルイソブチルケトン、鉱物油、植物油、水等を溶剤として使用することができる。

【0148】また、これらの製剤において均一かつ安定な形態をとるために、必要ならば界面活性剤を添加することもできる。添加することが出来る界面活性剤としては特に限定はないが、例えば、ポリオキシエチレンが付加したアルキルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンが付加したアルキルエーテル、ポリオキシエチレンが付加した高級脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンが付加したソルビタン高級脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンが付加したトリスチリルフェニルエーテル等の非イオン性界面活性剤、ポリオキシエチレンが付加したアルキルフェニルエーテルの硫酸エステル塩、アルキルベンゼンスルホン酸塩、高級アルコールの硫酸エステル塩、アルキルナフタレンスルホン酸塩、ポリカルボン酸塩、リグニンスルホン酸塩、アルキルナフタレンスルホン酸塩のホルムアルデヒド縮合物、イソブチレン-無水マレイン酸共重合体等が挙げられる。

【0149】有効成分量は、通常組成物 (製剤) 全体に対して、好ましくは0.01~90重量%であり、より好ましくは0.05~85重量%である。

【0150】このようにして得られた水和剤、乳剤、フロアブル剤は水で所定の濃度に希釈して懸濁液あるいは乳濁液として、粉剤・粒剤はそのまま使用される。

【0151】本発明化合物を有効成分とする組成物は、花卉、芝、牧草を含む農園芸作物の栽培に際し発生する前記病害の防除に対し、種子処理、茎葉散布、土壌施用又は水面施用等により使用することができる。

【0152】なお、本発明化合物は単独でも十分有効であることは言うまでもないが、各種の殺菌剤や殺虫・殺ダニ剤または共力剤の1種又は2種以上と混合して使用することも出来る。

【0153】本発明化合物と混合して使用出来る殺菌剤、殺虫剤、殺ダニ剤、植物生長調節剤の代表例を以下に示す。

【0154】殺菌剤：

銅剤；塩基性塩化銅、塩基性硫酸銅等。

硫黄剤；チウラム、ジネブ、マンネブ、マンコゼブ、ジラム、プロビネブ、ポリカーバメート等。

ポリハロアルキルチオ剤；キャプタン、フォルベット、ジクロルフルアニド等。

有機塩素剤；クロロタロニル、フサライド等。

有機リン剤；IBP、EDDP、トリクロホスメチル、ピラゾホス、ホセチル等。

【0155】ベンズイミダゾール剤；チオファネートメチル、ペノミル、カルベンダジム、チアベンダゾール等。

ジカルボキシイミド剤；イプロジオン、プロシミドン、ピンクロゾリン、フルオリミド等。

カルボキシアミド剤；オキシカルボキシン、メプロニル、フルトラニル、テクロフタラム、トリクラミド、ペンシクロン等。

アシルアラニン剤；メタラキシル、オキサジキシル、フララキシル等。

メトキシアクリレート剤；クレソキシムメチル、アゾキシストロビン、メトミノストロビン等。

アニリノピリミジン剤；アンドプリン、メバニピリム、ピリメタニル、ジプロジニル等。

【0156】SBI剤；トリアジメホン、トリアジメノール、ビテルタノール、ミクロブタニル、ヘキサコナゾール、プロピコナゾール、トリフルミゾール、プロクロラズ、ペフラゾエート、フェナリモール、ピリフェノックス、トリホリン、フルシラゾール、エタコナゾール、ジクロブトラゾール、フルオトリマゾール、フルトリアフェン、ペンコナゾール、ジニコナゾール、イマザリル、トリデモルフ、フェンプロピモルフ、ブチオベート、エボキシコナゾール、メトコナゾール等。

抗生物質剤；ポリオキシン、プラストサイジンS、カスガマイシン、バリダマイシン、硫酸ジヒドロストレプトマイシン等。

【0157】その他；プロバモカルブ塩酸塩、キントゼン、ヒドロキシイソオキサゾール、メタスルホカルブ、アニラジン、イソプロチオラン、プロベナゾール、キノメチオナート、ジチアノン、ジノカブ、ジクロメジン、フェルムゾン、フルアジナム、ピロキロン、トリシクラゾール、オキシロニック酸、ジチアノン、イミノクタジン酢酸塩、シモキサニル、ピロールニトリン、メタスルホカルブ、ジエトフェンカルブ、ピナバクリル、

レシチン、重曹、フェナミノスルフ、ドジン、ジメトモルフ、フェナジンオキシド、カルプロバミド、フルスルファミド、フルジオキシニル、ファモキサドン等。

【0158】殺虫・殺ダニ剤：

有機燐及びカーバメート系殺虫剤；フェンチオン、フェニトロチオン、ダイアジノン、クロルピリホス、ESP、バミドチオン、フェントエート、ジメトエート、ホルモチオン、マラソン、トリクロルホン、チオメトン、ホスメット、ジクロルボス、アセフェート、EPBP、メチルパラチオン、オキシジメトンメチル、エチオン、サリチオン、シアノホス、イソキサチオン、ピリダフェンチオン、ホサロン、メチダチオン、スルプロホス、クロルフェンビンホス、テトラクロルビンホス、ジメチルビンホス、プロバホス、イソフェンホス、エチルチオメトン、プロフェノホス、ピラクロホス、モノクロトホス、アジンホスメチル、アルディカルブ、メソミル、チオジカルブ、カルボフラン、カルボスルフェン、ベンフラカルブ、フラチオカルブ、プロボキスル、BPMC、MTMC、MIPC、カルバリル、ピリミカブ、エチオフエンカルブ、フェノキシカルブ、EDDP等。

【0159】ピレスロイド系殺虫剤；ベルメトリン、シベルメトリン、デルタメスリン、フェンバレレート、フェンプロパトリン、ピレトリン、アレスリン、テトラメスリン、レスメトリン、ジメスリン、プロバスリン、フェノトリン、プロトリン、フルバリネート、シフルトリン、シハロトリン、フルシトリネート、エトフェンプロクス、シクロプロトリン、トラロメトリン、シラフルオフェン、プロフェンプロクス、アクリナスリン等。

【0160】ベンゾイルウレア系その他の殺虫剤；ジフルベンズロン、クロルフルアズロン、ヘキサフルムロン、トリフルムロン、テトラベンズロン、フルフェノクスロン、フルシクロクスロン、ブプロフェジン、ピリアロキシフェン、メトブレン、ベンゾエピン、ジアフェンチウロン、アセタミプリド、イミダクロプリド、ニテンピラム、フィプロニル、カルタップ、チオシクラム、ペンシルタップ、硫酸ニコチン、ロテノン、メタアルデヒド、機械油、BTや昆虫病原ウイルス等の微生物農薬等。

【0161】殺線虫剤；フェナミホス、ホスチアゼート等。

【0162】殺ダニ剤；クロルベンジレート、フェニソプロモレート、ジコホル、アミトラズ、BPPS、ベンゾメート、ヘキシチアゾクス、酸化フェンブタスズ、ポリナクチン、キノメチオネート、CPCBS、テトラジホン、アベルメクチン、ミルベメクチン、クロフェンテジン、シヘキサチン、ピリダベン、フェンピロキシメート、テブフェンピラド、ピリミジフェン、フェノチオカルブ、ジエノクロル等。

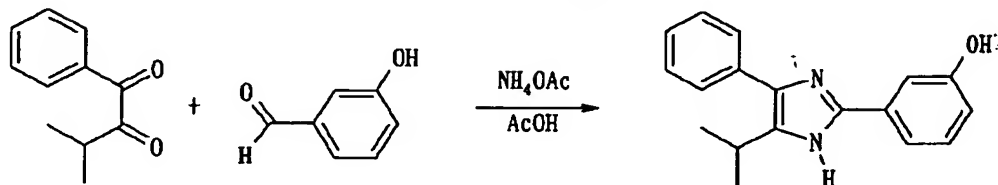
【0163】植物生長調節剤；ジベレリン類（例えばジベレリンA3、ジベレリンA4、ジベレリンA7）IA

A、NAA等。

【0164】

【実施例】次に、実施例を挙げて本発明を更に詳細に説明する。

実施例1



【0166】3-メチル-1-フェニル-1, 2-ブタンジオン0.92g (5.2mmol)、3-ヒドロキシベンズアルデヒド0.63g (5.2mmol)、酢酸アンモニウム4.0g (52.2mmol)を、酢酸10ml中で4時間加熱還流した。放冷後、反応溶液を水に加え30分攪拌し、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和重曹水、飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ベンゼン：酢酸エチル=2：1）

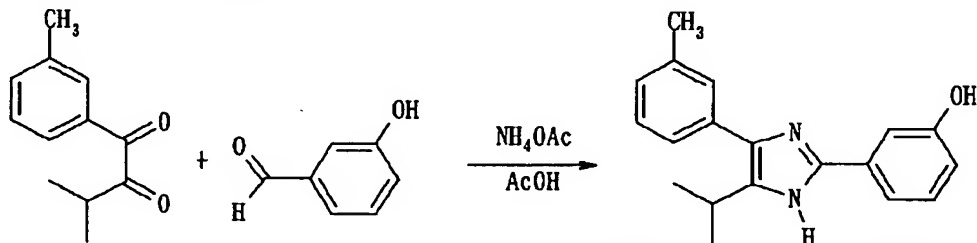
で精製し、目的物0.98gを得た。収率67%、amorphous

【0167】実施例2

2-(3-ヒドロキシフェニル)-5-(1-メチルエチル)-4-(3-メチルフェニル)イミダゾール（化合物No. II-16(a)）の製造。

【0168】

【化24】



【0169】3-メチル-1-(3-メチルフェニル)-1, 2-ブタンジオン0.92g (5.2mmol)、3-ヒドロキシベンズアルデヒド0.63g (5.2mmol)、酢酸アンモニウム4.0g (52.2mmol)を、酢酸10ml中で4時間加熱還流した。放冷後、反応溶液を水に加え30分攪拌し、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和重曹水、飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ベン

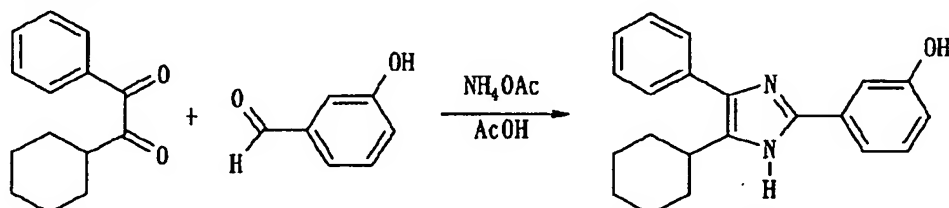
ゼン：酢酸エチル=2：1）で精製し、目的物0.98gを得た。収率67%、amorphous

【0170】実施例3

5-シクロヘキシル-2-(3-ヒドロキシフェニル)-4-フェニルイミダゾール（化合物No. I-33）の合成

【0171】

【化25】



【0172】1-シクロヘキシル-2-フェニル-1, 2-エタンジオン0.8g (3.7mmol)、3-ヒドロキシベンズアルデヒド0.45g (3.7mmol)、酢酸アンモニウム2.85g (37mmol)を、酢酸10ml中で3時間加熱還流した。放冷後、反応溶液を水に加え30分攪拌し、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和重曹水、飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮後、残渣をシリカ

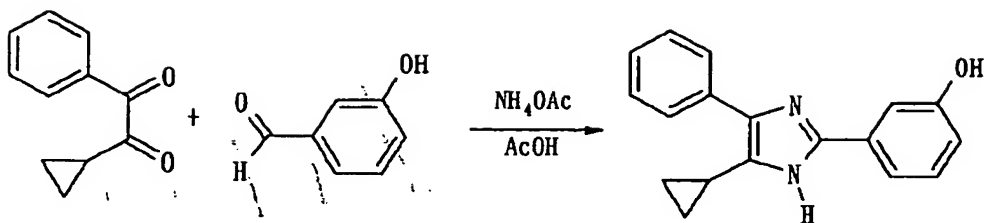
ゲルカラムクロマトグラフィー（ベンゼン：酢酸エチル=2：1）で精製し、目的物0.83gを得た。収率70%、mp. 205-208℃

【0173】実施例4

5-シクロプロピル-2-(3-ヒドロキシフェニル)-4-フェニルイミダゾール（化合物No. I-31）の合成

【0174】

## 【化26】



【0175】1-シクロプロピル-2-フェニル-1,2-エタンジオン0.92g (5.2mmol)、3-ヒドロキシベンズアルデヒド0.63g (5.2mmol)、酢酸アンモニウム4.0g (52.2mmol)を、酢酸10ml中で4時間加熱還流した。放冷後、反応溶液を水に加え30分攪拌し、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和重曹水、飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ベンゼン：酢酸エチル

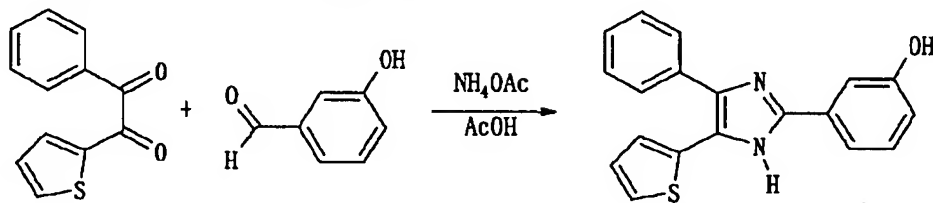
=2:1）で精製し、目的物0.98gを得た。  
収率67%、amorphous

## 【0176】実施例5

2-(3-ヒドロキシフェニル)-4-フェニル-5-(2-チエニル)イミダゾール（化合物No. I-80）の合成

## 【0177】

## 【化27】



【0178】1-フェニル-2-(2-チエニル)-1,2-エタンジオン0.23g (1.06mmol)、3-ヒドロキシベンズアルデヒド0.13g (1.06mmol)、酢酸アンモニウム0.82g (10.6mmol)を、酢酸3ml中で3時間加熱還流した。放冷後、反応溶液を水に加え30分攪拌し、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和重曹水、飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（n-

ヘキサン：酢酸エチル=2:1）で精製し、目的物0.23gを得た。

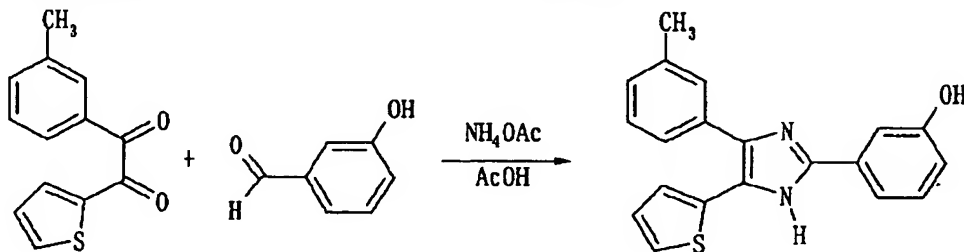
収率68%、mp. 230-232℃

## 【0179】実施例6

2-(3-ヒドロキシフェニル)-4-(3-メチルフェニル)-5-(2-チエニル)イミダゾール（化合物No. II-16(i)）の合成

## 【0180】

## 【化28】



【0181】1-(3-メチルフェニル)-2-(2-チエニル)-1,2-エタンジオン1.41g (6.1mmol)、3-ヒドロキシベンズアルデヒド0.75g (6.1mmol)、酢酸アンモニウム0.94g (12.2mmol)を、酢酸20ml中で3時間加熱還流した。放冷後、反応溶液を水に加え30分攪拌し、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和重曹水、飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（n

-ヘキサン：酢酸エチル=7:3）で精製し、目的物1.11gを得た。

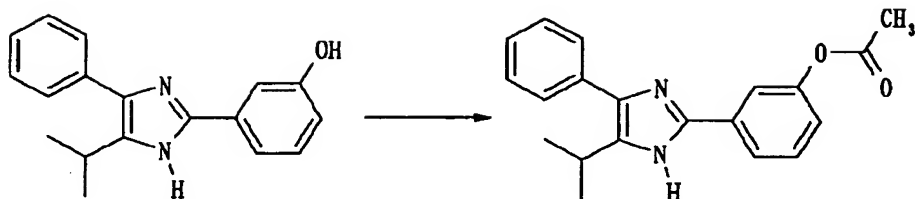
収率54%、mp. 223-225℃

## 【0182】実施例7

2-(3-アセトキシフェニル)-5-(1-メチルエチル)-4-フェニルイミダゾール（化合物No. I-108）の合成

## 【0183】

## 【化29】



【0184】2-(3-ヒドロキシフェニル)-5-(1-メチルエチル)-4-フェニルイミダゾール0.62 g (2 mmol)、アセチルクロライド0.16 g (2 mmol)、トリエチルアミン0.20 g (2 mmol)を、クロロホルム30 ml中で4時間加熱還流した。放冷後、反応溶液を水に加えクロロホルムで抽出し、有機層を飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮後、残渣をシリカゲルカラムク

ロマトグラフィー(クロロホルム：酢酸エチル=4：1)で精製し、目的物0.54 gを得た。

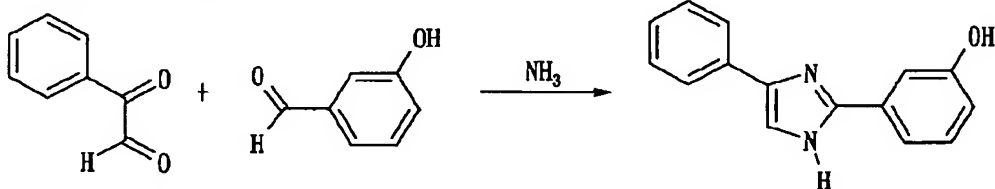
収率76%、mp. 236-237°C

【0185】実施例8

2-(3-ヒドロキシフェニル)-4-フェニルイミダゾール(化合物No. I-1)の合成

【0186】

【化30】



【0187】3-ヒドロキシベンズアルデヒド1.22 g (10.0 mmol)、28%アンモニア水4 mlをメタノール20 mlに加え、1時間加熱還流を行なった後、フェニルグリオキサル1水和物1.52 g (10.0 mmol)を加え、更に2時間加熱還流を行なった。反応液を放冷後、減圧下溶媒を留去し、残渣を酢酸エチルに溶解し、飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮後、残渣をシリカゲルカラ

ムクロマトグラフィー(クロロホルム：酢酸エチル=7：3)で精製し、目的物0.76 gを得た。

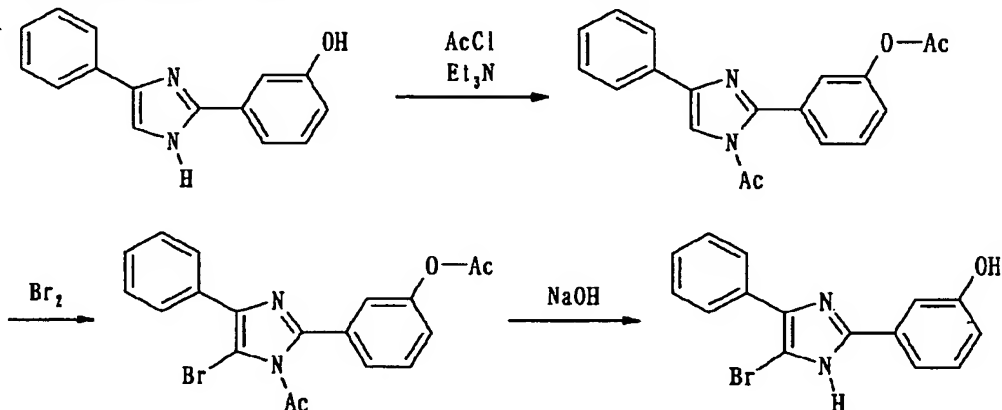
収率32%、amorphous

【0188】実施例9

5-ブロモ-2-(3-ヒドロキシフェニル)-4-フェニルイミダゾール(化合物No. I-62)の合成

【0189】

【化31】

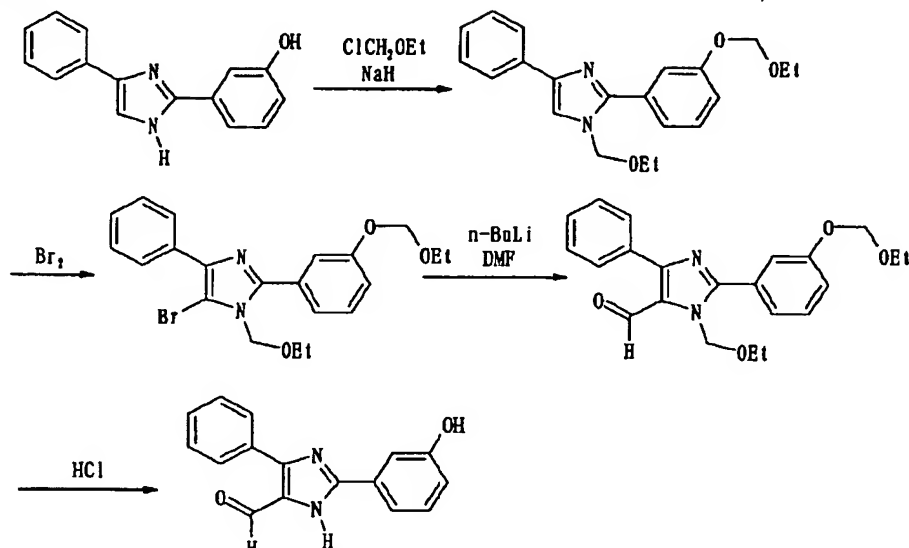


【0190】2-(3-ヒドロキシフェニル)-4-フェニルイミダゾール5.0 g (21.2 mmol)、アセチルクロライド3.49 g (44.5 mmol)、トリエチルアミン4.49 g (44.5 mmol)をクロロホルム50 mlに加え、1時間加熱還流を行なった。反応液を放冷後、アセチルクロライド0.83 g (10.6 mmol)、トリエチルアミン1.07 g (10.6 mmol)を加え、さらに1時間加熱還流を行なった。放冷後、反応液を水に加え、クロロホルムで抽出した。有機層を飽和重曹水、飽和食塩水で洗浄後、無水

硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(ベンゼン：酢酸エチル=9：1)で精製し、1-アセチル-2-(3-アセトキシフェニル)-4-フェニルイミダゾール1.12 g (収率17%)を得た。

【0191】得られた結晶0.55 g (1.72 mmol)をクロロホルム10 mlに溶解し、室温下、臭素0.23 g (1.72 mmol)を加えた。室温で1時間攪拌した後、反応溶液を水に加え、クロロホルムで抽出し、有機層を飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸マグネシウ

ムで乾燥した。減圧濃縮後、残渣をエタノール10mlに溶解し、水酸化ナトリウム0.14g、水1.5mlを加え、室温で1.5時間攪拌した。減圧濃縮後、酢酸エチルに溶解し、1N塩酸、飽和食塩水で洗浄後、減圧濃縮し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ベンゼン：酢酸エチル=9：1）で精製し、目的物0.41gを得た。



【0194】2-(3-ヒドロキシフェニル)-4-フェニルイミダゾール11.8g(50mmol)をDMF100mlに溶解し、氷冷下、60%水素化ナトリウム4.4g(110mmol)を加えた。氷冷下で30分攪拌した後、クロロメチルエチルエーテル10.4g(110mmol)を加え、室温で2時間攪拌した。反応溶液を水に加え、酢酸エチルで抽出し、有機層を飽和食塩水で洗浄した。減圧濃縮後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（クロロホルム：酢酸エチル=9：1）で精製し、1-エトキシメチル-2-(3'-エトキシメトキシフェニル)-4-フェニルイミダゾール11.1g(収率63%)を得た。

【0195】1-エトキシメチル-2-(3-エトキシメトキシフェニル)-4-フェニルイミダゾール3.86g(10.0mmol)をクロロホルム50mlに加え、室温下、臭素1.6g(10.0mmol)を滴下し、室温で1時間攪拌した。反応溶液を水に加え、クロロホルムで抽出し、有機層を飽和重曹水、飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（n-ヘキサン：酢酸エチル=7：3）で精製し、5-ブromo-1-エトキシメチル-2-(3'-エトキシメトキシフェニル)-4-フェニルイミダゾール2.33g(収率53%)を得た。

【0196】5-ブromo-1-エトキシメチル-2-

収率76%、amorphous

【0192】実施例10

5-ホルミル-2-(3-ヒドロキシフェニル)-4-フェニルイミダゾール（化合物No. I-67）の合成

【0193】

【化32】

（3-エトキシメトキシフェニル）-4-フェニルイミダゾール2.75g(6.4mmol)を脱水THFに加え、窒素雰囲気下、-78℃に冷却後n-ブチリチウム（1.6M, n-ヘキサン溶液）4.0ml(6.4mmol)を滴下した。10分攪拌した後、脱水DMFを2.5ml(32mmol)を加え、-78℃で1時間、-10℃で1時間攪拌した。反応溶液を10%塩化アンモニウム溶液に加え、酢酸エチルで抽出し、有機層を飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。

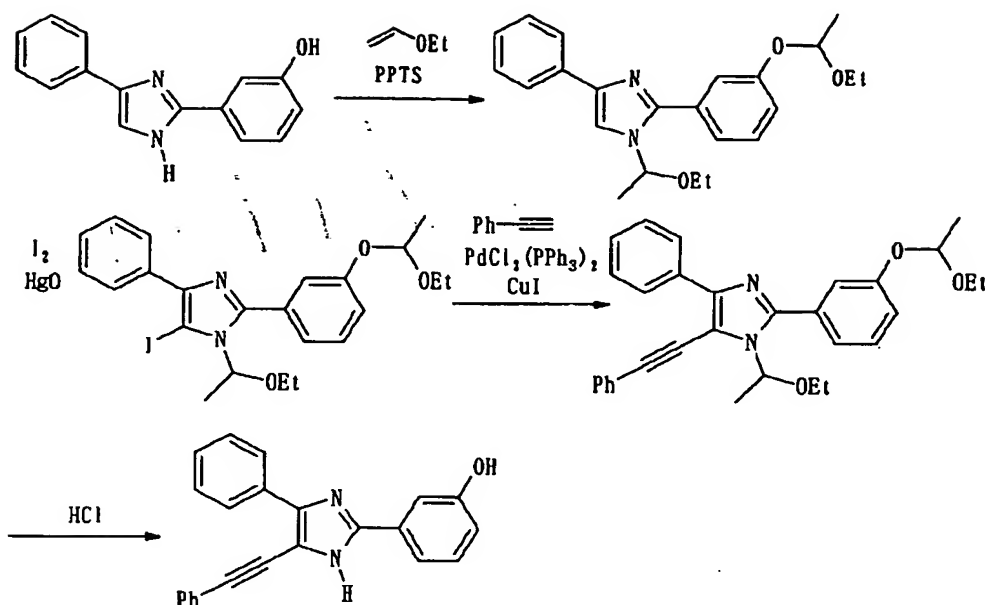
【0197】減圧濃縮後、残渣をエタノール14mlに溶解し、4N塩酸14mlを加え、室温で4時間、50℃で2時間攪拌した。放冷後、減圧濃縮し、残渣を酢酸エチルに溶解し飽和重曹水、飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（クロロホルム：酢酸エチル=4：1）で精製し、目的物0.52gを得た。収率31%、mp. 230-232℃

【0198】実施例11

2-(3-ヒドロキシフェニル)-4-フェニル-5-(フェニルエチル)イミダゾール（化合物No. I-40）の合成

【0199】

【化33】



【0200】2-(3-ヒドロキシフェニル)-4-フェニルイミダゾール5.0g(15.3mmol)をクロロホルム40mlとTHF40mlの混合溶媒に溶解し、エチルビニルエーテル3.3g(46.0mmol)、PPTS(ピリジニウムp-トルエンスルホネート)を触媒量加え、24時間加熱還流を行った。放冷後、溶媒を減圧留去し、残渣を酢酸エチルに溶解した。飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(n-ヘキサン：酢酸エチル=4：1)で精製し、1-(1-エトキシエチル)-2-[3-(1-エトキシエトキシ)フェニル]-4-フェニルイミダゾール5.47g(収率68%)を得た。

【0201】1-(1-エトキシエチル)-2-[3-(1-エトキシエトキシ)フェニル]-4-フェニルイミダゾール3.85g(10.1mmol)をクロロホルム200mlに溶解し、ヨウ素2.95g(11.6mmol)、赤色HgO1.81g(8.4mmol)を加え、12時間加熱還流を行った。反応混合物を放冷後、不溶物をろ別し、ろ液を飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(n-ヘキサン：酢酸エチル=4：1)で精製し、1-(1-エトキシエチル)-2-[3-(1-エトキシエトキシ)フェニル]-5-ヨード-4-フェニルイミダゾール2.83g(収率55%)を得た。

【0202】1-(1-エトキシエチル)-2-[3-(1-エトキシエトキシ)フェニル]-5-ヨード-4-フェニルイミダゾール1.11g(2.19mmol)をトリエチルアミン5ml、THF5mlの混合溶媒に溶解し、続いてフェニルアセチレン0.26g(2.62mmol)、CuI 0.041g(0.2

2mmol)、PdCl<sub>2</sub>(PPh<sub>3</sub>)<sub>2</sub>0.076g(0.11mmol)を加え、アルゴン雰囲気下、6時間加熱還流を行った。

【0203】反応混合物を放冷後、フェニルアセチレン0.26g(2.62mmol)、CuI 0.041g(0.22mmol)、PdCl<sub>2</sub>(PPh<sub>3</sub>)<sub>2</sub>0.076g(0.11mmol)を追加し、アルゴン雰囲気下でさらに12時間加熱還流を行った。反応液を放冷後、水に加え酢酸エチルで抽出し、有機層を飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(n-ヘキサン：酢酸エチル=4：1)で精製し、1-(1-エトキシエチル)-2-[3-(1-エトキシエトキシ)フェニル]-5-フェニルエチニル-4-フェニルイミダゾール0.6g(57%)を得た。

【0204】1-(1-エトキシエチル)-2-[3-(1-エトキシエトキシ)フェニル]-5-フェニルエチニル-4-フェニルイミダゾール0.6g(1.25mmol)をエタノール5mlに溶解し、濃塩酸5mlを加え室温で15分攪拌した。反応液を水に加え、飽和重曹水で中和後、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(n-ヘキサン：酢酸エチル=4：1)で精製し、目的物0.22gを得た。

収率52%、mp. 201-203℃

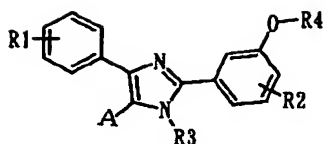
【0205】上記のようにして得られた本発明化合物を第3表に示した。なお、表中の略号、記号は第1表、第2表と同じ意味を示す。

【0206】

【表9】



第 3 表



化合物番号	A	(R <sub>1</sub> ) <sub>k</sub>	(R <sub>2</sub> ) <sub>l</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	物理定数 [ ]: 融点°C
III-1	H	H	H	H	H	amorphous
III-2	(CH <sub>2</sub> ) <sub>3</sub> CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	[174-177]
III-3	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H	amorphous
III-4	a4	H	H	H	H	[189-191]
III-5	a6	H	H	H	H	[205-208]
III-6	a7	H	H	H	H	[126-128]
III-7	a13	H	H	H	H	[201-203]
III-8	a14	H	H	H	H	amorphous
III-9	a15	H	H	H	H	[212-214]
III-10	Cl	H	H	H	H	amorphous
III-11	Br	H	H	H	H	amorphous
III-12	I	H	H	H	H	amorphous
III-13	CF <sub>3</sub>	H	H	H	H	[202-205]
III-14	CHO	H	H	H	H	[230-232]
III-15	2-Pyridyl	H	H	H	H	[113-117]
III-16	3-Pyridyl	H	H	H	H	amorphous
III-17	a19	H	H	H	H	[230-232]
III-18	a20	H	H	H	H	[216-219]
III-19	a21	H	H	H	H	[230-232]
III-20	a22	H	H	H	H	amorphous
III-21	a31	H	H	H	H	[254-255]
III-22	a34	H	H	H	H	amorphous
III-23	a35	H	H	H	H	[250 up]

【0207】

【表10】

第3表(つづき)

化合物番号	A	(R <sub>1</sub> ) <sub>k</sub>	(R <sub>2</sub> ) <sub>l</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	物理定数 [ ] : 融点℃
III-24	a40	H	H	H	H	[250 up]
III-25	a45	H	H	H	H	[164-167]
III-26	a46	H	H	H	H	[250 up]
III-27	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	2-Me	H	H	H	amorphous
III-28	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	3-Me	H	H	H	[100-104]
III-29	CH <sub>2</sub> C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	3-Me	H	H	H	[205-209]
III-30	CH <sub>2</sub> (CH <sub>3</sub> )CH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	3-Me	H	H	H	[105-108]
III-31	C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	3-Me	H	H	H	[204-205]
III-32	a5	3-Me	H	H	H	[226-230]
III-33	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	4-CF <sub>3</sub>	H	H	H	amorphous
III-34	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	4-Me	H	H	H	amorphous
III-35	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	2-F	H	H	H	amorphous
III-36	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	3-Cl	H	H	H	amorphous
III-37	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	4-Cl	H	H	H	amorphous
III-38	CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	Ac	H	[175-177]

【0208】〔農園芸用殺菌剤〕次に、本発明の組成物の実施例を若干示すが、添加物及び添加割合は、これら実施例に限定されるべきものではなく、広範囲に変化さ

実施例12 水和剤

本発明化合物  
珪藻土  
ル硫酸エステル  
酸塩

成分40%の水和剤を得る。

本発明化合物  
キシレン  
ジメチルホルムアミド  
ポリオキシエチレンアルキルアリルエーテル

以上を混合溶解して、有効成分30%の乳剤を得る。

実施例14 懸濁剤

本発明化合物  
リグニンスルホン酸ナトリウム  
ドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム  
キサンタンガム  
水

以上を混合し、粒度が1ミクロン以下になるまで湿式粉碎して、有効成分10%の懸濁剤を得る。

【0212】

【発明の効果】次に、本発明化合物が各種植物病害防除剤の有効成分として有用であることを試験例で示す。

【0213】試験例1 ブドウと病防除試験

素焼きポットで栽培したブドウ幼苗(品種「甲州」、2

せることができる。製剤実施例中の部は重量部を示す。

【0209】

40部  
53部 高級アルコール  
4部 アルキルナフタレンスルホン  
3部 以上を均一に混合して微細に粉碎して、有効

【0210】実施例13 乳剤

30部  
33部  
30部  
7部

【0211】

10部  
4部  
1部  
0.2部  
84.8部

葉期)に、実施例13の本発明化合物の乳剤を有効成分200ppmの濃度で散布した。散布後、室温で自然乾燥し、ブドウと病菌(*Plasmopara viticola*)の遊走子嚢の懸濁液を噴霧接種し、明暗を12時間毎に繰り返す高湿度の恒温室(20℃)に10日間保持した。葉上の病斑出現状態を無処理と比較調査し、防除効果を求めた。その結果以下の化合物が75%

以上の優れた防除価を示した。なお、化合物番号は第3表中の化合物番号に対応する。

【0214】III-2、III-3、III-5、III-6、III-7、III-8、III-9、III-10、III-11、III-12、III-13、III-15、III-16、III-17、III-18、III-19、III-20、III-21、III-22、III-25、III-27、III-28、III-29、III-30、III-31、III-32、III-35、III-36、III-37、III-38

【0215】試験例2 トマト疫病防除試験  
素焼きポットで栽培したトマト幼苗（品種「レジナ」、4～5葉期）に、実施例13の本発明化合物の乳剤を有効成分200ppmの濃度で散布した。散布後、室温で

自然乾燥し、トマト疫病菌 (*Phytophthora infestans*) の遊走子嚢の懸濁液を噴霧接種し、明暗を12時間毎に繰り返す高温度の恒温室(20℃)に4日間保持した。葉上の病斑出現状態を無処理と比較調査し、防除効果を求めた。その結果以下の化合物が75%以上の優れた防除価を示した。なお、化合物番号は第3表中の化合物番号に対応する。

【0216】III-2、III-3、III-4、III-5、III-6、III-9、III-10、III-11、III-12、III-13、III-16、III-17、III-18、III-19、III-20、III-21、III-22、III-27、III-28、III-29、III-30、III-31、III-32、III-33、III-34、III-35、III-36、III-37

フロントページの続き

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	FI	テーム(参考)
C07D 409/04 417/04		C07D 409/04 417/04	
(72)発明者 濱村 洋 神奈川県小田原市高田345 日本曹達株式 会社小田原研究所内		Fターム(参考) 4C063 AA01 BB01 CC25 CC26 CC51 CC61 CC62 CC75 CC76 CC92 CC94 DD04 DD06 DD12 DD22 DD25 EE03	
(72)発明者 斎賀 睦幸 神奈川県小田原市高田345 日本曹達株式 会社小田原研究所内		4H011 AA01 AD01 BA01 BB09 BC01 BC06 BC07 DA15 DA16 DD03 DE17	